

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2016-522299

(P2016-522299A)

(43) 公表日 平成28年7月28日(2016.7.28)

(51) Int.Cl.

C08L	101/00	(2006.01)
C08K	3/38	(2006.01)
C08K	3/28	(2006.01)
C08K	7/00	(2006.01)
C08K	3/00	(2006.01)

F 1

C08L	101/00
C08K	3/38
C08K	3/28
C08K	7/00
C08K	3/00

テーマコード(参考)

4 J O O 2

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 53 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2016-520460 (P2016-520460)
(86) (22) 出願日	平成26年6月18日 (2014.6.18)
(85) 翻訳文提出日	平成27年12月17日 (2015.12.17)
(86) 国際出願番号	PCT/EP2014/062800
(87) 国際公開番号	W02014/202652
(87) 国際公開日	平成26年12月24日 (2014.12.24)
(31) 優先権主張番号	13172868.5
(32) 優先日	平成25年6月19日 (2013.6.19)
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人	505005049 スリーエム イノベイティブ プロパティ ズ カンパニー アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133 -3427, セント ポール, ポスト オ フィス ボックス 33427, スリーエ ム センター
(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敏
(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(74) 代理人	100146466 弁理士 高橋 正俊

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】ポリマー／窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成される構成部品、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物、及びその使用

(57) 【要約】

本発明は、構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 mm の壁厚を有する、熱可塑加工によって生成される構成部品に関し、その構成部品は、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、その充填剤は、窒化ホウ素凝集体を含む。本発明は更に、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物に関する。本発明は更に、冷却される構成部品又はアセンブリから放熱するためのそのような構成部品の使用に関する。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 mm の壁厚を有する構成部品であって、前記構成部品が、ポリマー / 窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成され、前記ポリマー / 窒化ホウ素化合物が、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導充填剤を含み、前記充填剤が、窒化ホウ素凝集体を含む、構成部品。

【請求項 2】

前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が、少なくとも $1 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.01 \text{ W} / \text{cm}$)、好ましくは少なくとも $1.2 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.012 \text{ W} / \text{cm}$)、より好ましくは少なくとも $1.5 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.015 \text{ W} / \text{cm}$)、及び特に好ましくは少なくとも $1.8 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.018 \text{ W} / \text{cm}$) であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4 に従って、2 mm の厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、請求項 1 に記載の構成部品。 10

【請求項 3】

前記構成部品の平面内熱伝導率が、少なくとも $1.5 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.015 \text{ W} / \text{cm}$)、好ましくは少なくとも $1.8 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.018 \text{ W} / \text{cm}$)、より好ましくは少なくとも $2.2 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.022 \text{ W} / \text{cm}$)、及び特に好ましくは少なくとも $2.7 \text{ W} / \text{m} \cdot \text{K}$ ($0.027 \text{ W} / \text{cm}$) であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4 に従って、2 mm の厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、請求項 1 又は 2 に記載の構成部品。 20

【請求項 4】

前記平面貫通方向熱伝導率に対する前記平面内熱伝導率の異方性比が、少なくとも $1.5 \sim$ 最大 4 、好ましくは少なくとも $1.5 \sim$ 最大 3.5 、より好ましくは少なくとも $1.5 \sim$ 最大 3.0 、及び特に好ましくは少なくとも $1.5 \sim$ 最大 2.5 である、請求項 2 及び / 又は 3 に記載の構成部品。

【請求項 5】

窒化ホウ素凝集体の割合が、前記ポリマー / 窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも 5 体積 %、好ましくは少なくとも 10 体積 %、より好ましくは少なくとも 20 体積 %、及び特に好ましくは少なくとも 30 体積 % である、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の構成部品。 30

【請求項 6】

前記窒化ホウ素凝集体が、少なくとも 1 つの窒化物及び / 又はオキシ窒化物を含む無機結合相によって互いに結合している小板形状の六方晶窒化ホウ素一次粒子を含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項 7】

前記窒化ホウ素凝集体の前記無機結合相が、窒化アルミニウム (AlN)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン (TiN)、窒化ケイ素 (Si₃N₄)、又は / 及び窒化ホウ素 (BN)、好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び / 又は窒化ケイ素、より好ましくは窒化アルミニウム及び / 又はオキシ窒化アルミニウム、及び特に好ましくは窒化アルミニウムを含む、請求項 6 に記載の構成部品。 40

【請求項 8】

前記窒化ホウ素凝集体が、いずれの場合も窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、少なくとも 1 重量 %、好ましくは少なくとも 5 重量 %、より好ましくは少なくとも 10 重量 %、より好ましくは少なくとも 20 重量 %、及び特に好ましくは少なくとも 30 重量 % の結合相割合を有し、かつ / 又は前記窒化ホウ素凝集体のアスペクト比が、 $1.0 \sim 1.8$ 、好ましくは $1.0 \sim 1.5$ である、請求項 6 又は 7 のいずれかに記載の構成部品。

【請求項 9】

前記窒化ホウ素凝集体が、互いに凝集して薄片状の窒化ホウ素凝集体を形成する小板形状の六方晶一次窒化ホウ素粒子を含む、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項 10】

10

20

30

40

50

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数が、2.0超、好ましくは2.5以上、より好ましくは3.0以上、特に好ましくは3.5以上であり、かつ／又は

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚さが、500μm以下、好ましくは200μm以下、より好ましくは100μm以下、より好ましくは70μm以下、より好ましくは50μm以下、及び特に好ましくは35μm以下であり、かつ／又は前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体のアスペクト比が、1超、好ましくは2以上、より好ましくは3以上、より好ましくは5以上、及び特に好ましくは10以上である、請求項9に記載の構成部品。

【請求項11】

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、無機結合相を含む、請求項9又は10のいずれかに記載の構成部品。

10

【請求項12】

前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、いずれの場合も前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、少なくとも1%、好ましくは少なくとも5%、より好ましくは少なくとも10%、より好ましくは少なくとも20%、及び特に好ましくは少なくとも30%の結合相割合を有する、請求項11に記載の構成部品。

【請求項13】

前記結合相が、窒化アルミニウム(AlN)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、又は／及び窒化ホウ素(BN)、好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び／又は窒化ケイ素、より好ましくは窒化アルミニウム及び／又はオキシ窒化アルミニウム、及び特に好ましくは窒化アルミニウムを含む、請求項11又は12のいずれかに記載の構成部品。

20

【請求項14】

熱伝導率を上昇させる窒化ホウ素とは異なる少なくとも1つの充填剤を含む、請求項1～13のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項15】

窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、好ましくはアルミニウム、ケイ素、チタン、銅、鉄、及びブロンズ粉末、並びにそれらの混合物からなる群から選択される金属粉末であるか、あるいは窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、膨張黒鉛が特に好ましい、黒鉛、膨張黒鉛、又はカーボンブラックの形態の炭素であるか、あるいは窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び／若しくは窒化アルミニウムが特に好ましい、好ましくは酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、二酸化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素、及びそれらの混合物を含む群から選択される酸化物、窒化物、又は炭化物であるか、あるいは窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、鉱物充填剤であり、好ましくは、アルミノケイ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム(2MgO·SiO₂)、アルミニン酸マグネシウム(MgO·Al₂O₃)、ブルーサイト(水酸化マグネシウム、Mg(OH)₂)、石英、クリストバライト、及びそれらの混合物を含む群から選択される、請求項14に記載の構成部品。

30

【請求項16】

窒化ホウ素凝集体と、窒化ホウ素とは異なる前記熱伝導性充填剤との総割合が、いずれの場合も前記ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも20体積%、又は好ましくは少なくとも30体積%である、請求項14又は15のいずれかに記載の構成部品。

40

【請求項17】

前記構成部品の前記壁厚が、前記構成部分の少なくとも一部分上で最大2mmである、請求項1～16のいずれか一項に記載の構成部品。

【請求項18】

請求項1～17のいずれか一項に記載の構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物であって、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が、窒化ホウ素凝集体を含む、ポリマー／窒化ホウ素化合物。

【請求項19】

50

冷却される構成部品又はアセンブリから、好ましくは電子構成部品又はアセンブリから放熱するための、請求項1～17のいずれか一項に記載の構成部品の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高い平面貫通方向熱伝導率 (through-plane thermal conductivity) を有する安定した窒化ホウ素凝集体を使用するポリマー化合物の熱可塑加工によって生成される構成部品、そのような構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物、及び放熱のためのそのような構成部品の使用に関する。

【背景技術】

【0002】

熱可塑的に加工可能なプラスチックは、多種多様な用途に使用される。その目的のために、ベースポリマーの特性は、しばしば、追加成分との化合によって変更され、それにより各用途にカスタマイズされる。

【0003】

例えば、有機、鉱物、セラミック、ガラス、及び金属の充填剤を、ポリマーマトリックスと化合するための追加成分として使用することができる。追加成分は、例えば、機械的若しくは電気的特性、熱膨張の係数、又は密度を変更するか、あるいは熱伝導率を上昇させるために使用することができる。

【0004】

化合中、ポリマー及び追加成分からなる混合された材料が形成され、これは典型的には、顆粒の形態で蓄積し、成形プロセスにおいて更に加工される。構成部品を形成するための成形は、好ましくは、射出成形によって行われる。

【0005】

熱伝導性ポリマーベースの混合材料を生成するために、熱伝導性充填剤は、熱伝導性が不十分な熱可塑性マトリックス中にのみ導入されることが多い。六方晶窒化ホウ素は、小板形状の粒子形態を有する極めて熱伝導性の充填剤であり、熱伝導性ポリマー／窒化ホウ素混合材料（ポリマー／窒化ホウ素化合物）を生成するために使用され得る。

【0006】

熱可塑的に加工可能なポリマーを充填剤と化合する際、押出機が一般的に使用される。例えば、スクリューが材料を輸送することに加えて更なる機能を担う二軸スクリュー押出機が使用される。各用途に応じて、異なる実施形態は、押出機の異なる区域において、搬送要素、混合要素、例えば混練ブロック等の剪断要素、及び逆流要素を使用してもよい。混合要素及び剪断要素は、ポリマー溶融物及び充填剤の良好な混合及び均質化を確実にする。

【0007】

充填剤は、メインホッパーを介して、また同様にサイドフィーダを介して、ポリマーと一緒に添加され得る。充填剤が剪断に対して感応性である場合、充填剤の添加は、サイドフィーダを介することが特に重要である。ポリマー顆粒は、メインフィーダを介して押出機の供給区域中に投与され、その後、高圧及び強力な剪断下で溶融される。剪断感応性充填剤は、サイドフィーダを介して、既に溶融されたポリマーに添加される。

【0008】

剪断に対しより感応性が低い充填剤は、追加のサイド供給の間に、又はポリマーとともにメイン供給の間に、既に前の時点において、追加のサイドフィーダを介して添加され得る。剪断に対しより感受性が低い充填剤、又は、例えば顔料等の完全に均質化されていなければならない充填剤は、押出機により長く留まり、それらが添加された時点から、押出機における下流の均質化及び剪断領域の全てを通過する。

【0009】

例えば、スクリュー速度及び温度等の選択された化合パラメータに応じて、剪断感応性充填剤は、分解又は部分分解を経る場合がある。

10

20

30

40

50

【 0 0 1 0 】

押出機の末端で、化合物は、ストランドの形態のポリマー溶融物としてノズルを通って押出機を離れる。ストランドが冷却及び固化した後、造粒機は、化合顆粒を生成し、成形プロセスにおける更なる加工が意図される。

【 0 0 1 1 】

充填されていないポリマー顆粒、及び同様に、ポリマー及び充填剤からなる化合顆粒に関する1つの可能な成形処理は、射出成形である。ポリマー顆粒又は化合顆粒は、射出成形機において再溶融され、高圧下で鋳型に充填される。ここで、ポリマー溶融物又は化合溶融物は固化し、射出成形された構成部品を取り出すことができる。

【 0 0 1 2 】

射出成形において、成形に関する設計の優れた自由度があり、多数の機能を想定する複雑な構成部品が、射出成形され得る。充填剤を使用して、ポリマーは、果たすべき各用途及び機能に適合される。

10

【 0 0 1 3 】

熱伝導性ポリマー／窒化ホウ素化合物の生成及びそれらの構成部品への加工において、多くの影響因子が、熱伝導率結果に顕著に影響することが示されている。これらの影響因子としては、化合、成形、試料形態、試料延伸、及び使用される測定方法が挙げられる。

【 0 0 1 4 】

化合中、例えば、共混練機械（B u s s k n e a d e r s）、一軸スクリュー押出機、及び二軸スクリュー押出機が使用され得る。粗い又は穏やかな化合に対する調整は、機械設計及び／又はプロセスパラメータにより行うことができる。比較的粗い化合に合わせて調整するためには、分散要素及び例えば混練ブロック等の剪断要素の両方を使用することができ、より穏やかな化合に調整するためには完全に、例えば混練ブロックを分注することができる。より速いスクリュー速度は、化合物及びその化合物中の充填剤の比較的強力な剪断をもたらす一方、より遅いスクリュー速度は、化合物及びその化合物中の充填剤の比較的弱い剪断をもたらす。

20

【 0 0 1 5 】

ポリマーを窒化ホウ素粉末、例えば、噴霧乾燥窒化ホウ素粉末と化合して、ポリマー／窒化ホウ素化合物を形成するとき、30体積%の窒化ホウ素がポリアミド（P A 6）に添加される場合、強力な混合及び剪断並びに充填剤の良好な分散を伴う粗い化合は、化合物の比較的良好な機械特性をもたらすが、熱伝導率は比較的低いことが示されている。反対に、低い剪断及び不十分な分散を伴う穏やかな化合は、比較的良好な熱伝導率及び不十分な機械特性を有する化合物をもたらす。

30

【 0 0 1 6 】

その後の成形もまた、熱伝導率結果に影響する。粗い化合を用いて生成されるポリマー／窒化ホウ素化合物の試料が、高温圧縮によって生成される場合、平面貫通方向熱伝導率は、射出成形による同じポリマー／窒化ホウ素化合物から生成される引張試験棒の場合よりも40%高い。高温圧縮された試料の平面貫通方向熱伝導率の値は、2mm薄の射出成形プレート上で測定されるものよりも最大100%高い。2mmの厚みを有する薄いプレートが、穏やかな化合によって生成されたポリマー／窒化ホウ素化合物を用いて射出成形によって生成される場合、平面貫通方向熱伝導率は、粗い化合によって生成された化合物から射出成形された2mmのプレートのものよりも最大15%高い。

40

【 0 0 1 7 】

更に、試料形態も熱伝導率結果に影響する。4mmの厚みを有する射出成形された引張棒上で測定された平面貫通方向熱伝導率は、射出成形された2mm厚のプレート上で測定された平面貫通方向熱伝導率よりも最大50%高い。

【 0 0 1 8 】

射出成形では、試料延伸の種類もまた、熱伝導率結果に影響する。例えば、粗い化合及び2mm薄のプレートの射出成形では、熱伝導率は、ゲートの近く、試料の中央、及びゲートから離れて、大きく異なり得ることが示されている。例えば、高充填化合物における

50

熱伝導率は、試料延伸の位置によって20%程度偏向することがある。粗い化合及び引張試験棒の射出成形において、第1の試料肩部の直後にゲート近くで採取された試料の熱伝導率は、第2の試料肩部の前にゲートから離れて採取された試料から10%程度偏向することがある。

【0019】

最後に、測定方法もまた、平面貫通方向熱伝導率結果に影響する。平面貫通方向熱伝導率が、4mm厚の射出成形プレート上でホットディスク法を使用して測定される場合、等方性充填剤における測定結果は、2mm薄の射出成形プレート上でレーザーフラッシュ法を使用する測定値よりも約15~20%高く、更に、小板形状充填剤では、ホットディスク法を使用して、最大50%高い熱伝導率が測定される。

10

【0020】

これらの理由のため、熱伝導率測定の結果は、化合物の生成、化合顆粒の成形、試料延伸、及び熱伝導率測定が、同一の条件下で行われる場合のみ、直接比較することができる。

【0021】

一次粒子として存在し、一次粒子の凝集体としては存在しない六方晶窒化ホウ素粉末粒子は、異方性熱伝導率を有する。十分に結晶化した窒化ホウ素粉末は、小板形状の粒子形態を有する。窒化ホウ素小板は、典型的には、小板の厚みに対する小板直径の比率であるアスペクト比が10を超える。小板を通る熱伝導率は、小板の平面内の熱伝導率と比較して低い。

20

【0022】

化合物が、熱可塑性ポリマー及び小板形状の一次窒化ホウ素粒子の形態の窒化ホウ素粉末から生成される場合、一次窒化ホウ素粒子は、主に微細分散形態で存在する。そのような化合物が射出成形される場合、特に薄壁構成部品中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子の大部分は、それらを射出成形の表面に対して平行平面に、及び構成部品の表面に対して平行平面に整列させる。小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列は、射出成形された構成部品の、鋳型壁に近い領域と、そこから大きく離れた領域と、の間の剪断速度により生じる。射出成形された構成部品における小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列は、特性、具体的には熱伝導率の異方性をもたらす。ポリマー化合物の流れ方向（平面内）における3mm以下又は2mm以下の壁厚を有する薄壁構成部品における熱伝導率は、30体積%以上の充填剤装填時に、一般的に4倍大きく、構成部品壁を通る（平面貫通方向）熱伝導率は、最大7倍以上大きい。熱可塑性の射出成形された構成部品の熱伝導率における異方性は、多くの用途において不利である。例えば、筐体壁を通る放熱は、低い平面貫通方向熱伝導率のとき、同じように低い。筐体壁における急速な熱の分配が可能であるが、筐体壁を通る放熱がないため、射出成形筐体を使用する用途において、この特性は不利である。特に熱が二次元領域を通して消散されるべきであるこれらの用途に対しては、可能な限り高い平面貫通方向熱伝導率が望ましい。

30

【0023】

化合物中に50体積%未満の窒化ホウ素粉末の充填剤装填を用いると、2mm以下の壁厚を有する射出成形された薄壁構成部品中の平面貫通方向熱伝導率に関しては、通常1W/m·K(0.01W/cm)の値を超えない。

40

【0024】

窒化ホウ素もまた、小板形状の一次粒子の凝集体の形態で、熱熱伝導性充填剤としてポリマー中で使用することができる。例えば、噴霧乾燥、均衡圧縮、又は圧縮及びその後の焼結によって、窒化ホウ素凝集体を生成するための異なる方法が、米国第2006/0127422 A1号、国際公開特許第03/013845 A1号、米国第6,048,511号、欧州特許第0939066 A1号、米国第2002/0006373 A1号、米国第2004/0208812 A1号、国際公開特許第2005/021428 A1号、米国第5,854,155号、及び米国第6,096,671号に記載されている。

50

【0025】

この種の窒化ホウ素凝集体が使用される場合、窒化ホウ素凝集体の強力な分解が、二軸スクリュー押出機における化合中及び／又は射出成形中に行われる、つまり、凝集体の主な割合は、一次窒化ホウ素粒子又は凝集体断片に分かれ、これは、加工条件によっては、射出成形プレートのz-熱伝導率の大きい変動、及び特に低減をもたらし得る。この問題は、「*Boron Nitride in Thermoplastics: Effect of loading, particle morphology and processing conditions*」(Chandrashekhar Raman, Proceedings of the NATAS Annual Conference on Thermal Analysis and Applications (2008), 36th 60/1~60/10)において言及されている。10

【0026】

この調査では、熱可塑性ポリマー(Dow 17450 HDPE)を用いて、小板形状及び凝集した窒化ホウ素粉末を化合した。二軸スクリュー押出機(Werner & Pfleiderer ZSK-30、L/D比率28.5、2mmノズル)において、190の温度及び100RPMのスクリュー速度で化合を行った。

【0027】

球状PTX60窒化ホウ素凝集体(Momentive Performance Materials、平均凝集体サイズd50=60μm)をHDPE化合物において使用した場合、2つの混合区域を有する標準のスクリュー構成の使用が、混合区域を1つしか有さない変更されたスクリューを使用した場合よりも、PTX-60凝集体をより分解することを示した。これは、39体積%(60重量%)の充填剤装填時に、特に明らかとなる。比較的粗い加工によって生成された化合物の射出成形された引張棒試料上において測定された平面貫通方向熱伝導率は、化合中により穏やかな構成が使用された試料よりも約25%低い値(2.05W/m·K(0.0205W/cm))の代わりに1.5)を有することが分かった。標準のスクリュー構成を用いて生成された化合物から3.2mm厚の引張棒の代わりに薄い1mm厚のプレートが射出成形された場合、平面貫通方向熱伝導率は、39体積%(60重量%)の充填剤装填で、1.5W/m·K(0.015W/cm)から0.85W/m·K(0.0085W/cm)に減少する。この種の加工での熱伝導率は、PT120一次粒子が、同じ充填剤装填の化合物中で使用された場合と同様に低い。著者らは、熱伝導率の低減は、BN凝集体の分解に起因すると考える。2030

【0028】

記載される実験において、用いられた窒化ホウ素凝集体が、大部分が一次粒子の形態で射出成形された化合物中に存在するほどまでに、化合プロセス中又は射出成形プロセス中に崩壊すること、並びに多くの用途において、特に、射出成形された薄いプレート若しくは筐体壁の場合、高い平面貫通方向熱伝導率には凝集体形態が使用できないことが示された。

【0029】

DE 10 2010 050 900 A1は、窒化ホウ素小板が凝集体中で優先的配向を有する表面の粗い窒化ホウ素凝集体を生成するための方法を記載している。40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0030】

したがって、本発明によって対処される目的は、先行技術の不利益を克服しながら、薄壁構成部品において、高水準のプロセス信頼性、高い平面貫通方向熱伝導率の値、及び高い平面内熱伝導率の値を得ることができる熱可塑的に加工可能なポリマー／窒化ホウ素化合物を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0031】

上述の目的は、請求項1に記載の構成部品、請求項18に記載のポリマー／窒化ホウ素50

化合物、及び請求項 1 9 に記載の構成部品の使用によって達成される。構成部品の好ましい又は特に機能的な実施形態は、従属請求項 2 ~ 1 7 及び項目 2 ~ 3 2 に明記されている。

【 0 0 3 2 】

このため、本発明の主題は、構成部品の少なくとも一部分上に最大 3 mm の壁厚を有する熱可塑加工によって生成される構成部品であり、本構成部品は、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、この充填剤は、窒化ホウ素凝集体を含む。

【 0 0 3 3 】

本発明の更なる主題は、そのような構成部品を生成するためのポリマー / 窒化ホウ素化合物であり、このポリマー / 窒化ホウ素化合物は、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、この充填剤は、窒化ホウ素凝集体を含む。

10

【 0 0 3 4 】

本発明の更なる主題は、冷却される構成部品又はアセンブリから、好ましくは電子構成部品又はアセンブリから放熱するためのそのような構成部品の使用である。

【 0 0 3 5 】

本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物は、ポリマー / 窒化ホウ素化合物から作製される射出成形された薄壁構成部品の低い平面貫通方向熱伝導率の不利益を克服することができる。

20

【 0 0 3 6 】

平面貫通方向熱伝導率とは、平面貫通方向で、つまり、プレート平面に対して垂直に測定される熱伝導率である。平面内熱伝導率とは、平面内方向で、つまり、プレート平面に沿って測定される熱伝導率である。

【 0 0 3 7 】

驚くべきことに、射出成形された薄壁構成部品の平面貫通方向熱伝導率は、本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物を用いて著しく上昇させることができ、同時に良好な平面内熱伝導率も維持されることが示された。

30

【 0 0 3 8 】

同じ割合の窒化ホウ素を使用する場合、窒化ホウ素凝集体を用いる本発明による構成部品において、凝集していない窒化ホウ素粉末よりも高い熱伝導率の値を達成することが可能である。窒化ホウ素凝集体を使用して、窒化ホウ素ポリマー化合物及びそこから生成された構成部品において、凝集していない窒化ホウ素粉末よりも高い充填剤装填を達成することが可能である。

【 0 0 3 9 】

驚くべきことに、本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物はまた、使用される窒化ホウ素凝集体の強力な分解を伴わない比較的粗い化合によって加工されてもよい。薄壁構成部品が射出成形される場合であっても、窒化ホウ素凝集体の強力な分解は存在しない。本発明による構成部品は、再生成可能な熱伝導率特性及び機械特性を有する高水準のプロセス信頼性で生成することができる。

30

【 0 0 4 0 】

本発明による構成部品を生成するために使用される窒化ホウ素凝集体は、高い凝集体安定性を呈する。驚くべきことに、二軸スクリュー押出機における化合中の混合要素上及び剪断 / 分散要素上での剪断は、使用される窒化ホウ素凝集体の分解又は完全な分解をもたらさない。高い熱伝導率を構成部品にもたらし充填剤分解の問題が特に深刻である高充填剤装填時であっても、使用される窒化ホウ素凝集体は、一次粒子又は凝集体断片に、強力に分解しないか、又は部分的にのみ分解する。

40

【 0 0 4 1 】

本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物は、それらが、3 mm 以下の厚みを有する薄いプレートに加工されるときに 1 . 5 ~ 4 の異方性比を呈するため、有利である。大部分が等方性の窒化ホウ素凝集体が使用される場合、化合物及び射出成形プレート並びにこれらの構成部品の熱伝導率が実質的に等方性であり得ることが予期されることから、これは

50

驚くべきことである。粗い化合の場合においても、凝集体の一部が分解されたときでさえ、射出成形された薄いプレートに対してこの比率が保持される。

【0042】

10を超えるアスペクト比を有する異方性の小板形状又は鱗片状の窒化ホウ素凝集体が使用される場合であっても、射出成形された薄いプレートにおいて好ましく得られる1.5~4の異方性比は、当業者にとって驚くべきことである。小板形状の窒化ホウ素凝集体は薄いプレート内で整列し、平面内熱伝導率の上昇及び異方性比の上昇のために、平面貫通方向熱伝導率の低減を伴うことが予期されるであろう。

【0043】

異方性比は、十分に結晶化した小板形状の窒化ホウ素粉末が使用される場合よりも、著しく小さい。

【0044】

1.5~4の熱伝導率の異方性比が、特に薄いプレート又は筐体壁における放熱に対して望ましい。

【0045】

本発明による構成部品のための窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の充填剤の組み合わせを使用する場合であっても、1.5~4の熱伝導率の好ましい異方性比が保持されることも、予期されていなかった。当業者であれば、実質的に等方性の二次充填剤を使用する場合、異方性比が著しく減少されることを予期したであろうことから、これは驚くべきことである。平面貫通方向熱伝導率及び平面内伝導率の両方が、射出成形プレートにおいて窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤からなる充填剤の組み合わせを用いた場合、ポリマーと個々の成分との化合物、つまり、ポリマー及び窒化ホウ素凝集体からなる化合物、並びにポリマー及び二次充填剤からなる化合物から作製された射出成形プレートの熱伝導率の数学的に加えられた値よりも高いことは、更に驚くべきことである。

【0046】

窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の充填剤の組み合わせを使用した場合、窒化ホウ素凝集体単独を使用する場合と比較して、追加の二次充填剤が使用されるとき、同じ割合の窒化ホウ素凝集体で平面貫通方向において熱伝導率が著しく上昇するだけではなく、同時に平面内方向における強い上昇も存在することが、驚くべきことに示された。

【0047】

高すぎない熱伝導性充填剤及び補強充填剤の充填剤装填を伴うポリマー/窒化ホウ素化合物が、本発明による構成部品の生成のために使用されてもよいことは更に驚くべきことである。そのため、充填されたポリマー材料の特性を更に調整するために、最も標準の熱可塑性ポリマーにおいては50体積%以下、TPEポリマー(熱可塑性エラストマー)においては、例えば、70体積%以下の水準の総充填剤装填が可能であるように、更なる添加剤及び充填剤を添加することが可能である。

【図面の簡単な説明】

【0048】

【図1】スプルーを有し、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する薄い射出成形プレート、並びに熱伝導率の値(平面内熱伝導率及び平面貫通方向熱伝導率)が計算される平面内及び平面貫通方向を示す。

【図2a】平面貫通方向及び平面内熱伝導率を測定するために使用した試料を示す。図2aは、平面貫通方向熱伝導率を測定するために使用した、図1の射出成形プレートの中心から調製された $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料を示す。図2bは、平面内熱伝導率を測定するための試料の調製を示す。まず、瞬間接着剤を使用して接着することによって、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形プレートからなる試料を調製した。そのプレート積層体から、射出成形プレートの平面貫通方向に平行であり、流れ方向に垂直である試料が調製される。この試料上で、平面内熱伝導率が決定される。

【図2b】平面貫通方向及び平面内熱伝導率を測定するために使用した試料を示す。図2

10

20

30

40

50

aは、平面貫通方向熱伝導率を測定するために使用した、図1の射出成形プレートの中心から調製された $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料を示す。図2 bは、平面内熱伝導率を測定するための試料の調製を示す。まず、瞬間接着剤を使用して接着することによって、 $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料のプレート積層体を生成し、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形プレートからなる試料を調製した。そのプレート積層体から、射出成形プレートの平面貫通方向に平行であり、流れ方向に垂直である試料が調製される。この試料上で、平面内熱伝導率が決定される。

【図3 a】本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のために使用した実施例18の窒化ホウ素凝集体のSEM(Scanning Electron Microscope)画像を示す。図3 aは、多くの個々の小板形状の一次窒化ホウ素粒子並びにスクリーニングによって除去されずに生成物中に残存している微粉から構成される、 $25 \mu\text{m}$ の凝集体直径を有する窒化ホウ素凝集体のSEM画像を示す。図3 bは、凝集体安定性を決定するために使用した $100 \sim 200 \mu\text{m}$ の篩分留物を示す。10

【図3 b】本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のために使用した実施例18の窒化ホウ素凝集体のSEM(Scanning Electron Microscope)画像を示す。図3 aは、多くの個々の小板形状の一次窒化ホウ素粒子並びにスクリーニングによって除去されずに生成物中に残存している微粉から構成される、 $25 \mu\text{m}$ の凝集体直径を有する窒化ホウ素凝集体のSEM画像を示す。図3 bは、凝集体安定性を決定するために使用した $100 \sim 200 \mu\text{m}$ の篩分留物を示す。

【図4 a】本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のために使用した実施例1の窒化ホウ素凝集体のSEM画像を示す。図4 aは、 $500 \mu\text{m}$ 未満の篩分留物中の窒化ホウ素凝集体の概観画像を示す。図4 bは、 $30 \mu\text{m}$ の厚みを有する凝集体の破断面を示す。20

【図4 b】本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のために使用した実施例1の窒化ホウ素凝集体のSEM画像を示す。図4 aは、 $500 \mu\text{m}$ 未満の篩分留物中の窒化ホウ素凝集体の概観画像を示す。図4 bは、 $30 \mu\text{m}$ の厚みを有する凝集体の破断面を示す。

【図5】実施例29の $500 \mu\text{m}$ 未満の篩分留物中の本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物のために使用された窒化ホウ素凝集体のSEM概観画像を示す。窒化ホウ素凝集体の厚みは、 $10 \mu\text{m}$ である。30

【発明を実施するための形態】

【0049】

上で既に述べたように、平面貫通方向熱伝導率とは、平面貫通方向で、つまり、プレート平面に対して垂直に測定される熱伝導率である。平面内熱伝導率とは、平面内方向で、つまり、プレート平面内で測定される熱伝導率である。

【0050】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率は、好みしくは少なくとも $1 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.01 W/cm)、より好みしくは少なくとも $1.2 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.012 W/cm)、更により好みしくは少なくとも $1.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.015 W/cm)、及び特に好みしくは少なくとも $1.8 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.018 W/cm)である。熱伝導率は、DIN EN ISO 22007-4に従って、 2 mm の厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される。40

【0051】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の平面内熱伝導率は、好みしくは少なくとも $1.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.015 W/cm)、より好みしくは少なくとも $1.8 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.018 W/cm)、更により好みしくは少なくとも $2.2 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.022 W/cm)及び特に好みしくは少なくとも $2.7 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.027 W/cm)である。

【0052】

平面内熱伝導率を測定するために、 2 mm の厚みを有する円盤形状の射出成形試料は、

10

20

30

40

50

一方を他方の上に積み重ねて、一緒に接着される。このように調製されたプレート積層体から、 $2 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の寸法を有する 2 mm 薄の試料は、射出成形プレートの平面貫通方向に平行であり、流れ方向に垂直に調製される。平面内熱伝導率は、DIN EN ISO 22007-4 に従って、このように調製された 2 mm 厚の試料上で測定される。

【0053】

本発明による構成部品及び窒化ホウ素 / ポリマー化合物の平面貫通方向熱伝導率に対する平面内熱伝導率の異方性比は、好ましくは少なくとも 1.5 ~ 最大 4、より好ましくは少なくとも 1.5 ~ 最大 3.5、更により好ましくは少なくとも 1.5 ~ 最大 3.0、及び特に好ましくは少なくとも 1.5 ~ 最大 2.5 である。

10

【0054】

異方性比は、記載されるように決定される平面内熱伝導率を測定し、それを記載されるように測定される平面貫通方向熱伝導率で割ることによって計算される。

【0055】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物の平面貫通方向熱伝導率は、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱伝導率を、好ましくは少なくとも $0.8 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.008 W/cm)、より好ましくは少なくとも $1 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.01 W/cm)、更により好ましくは少なくとも $1.3 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.013 W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも $1.6 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.016 W/cm) 上回る。

20

【0056】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物の平面内熱伝導率は、熱伝導性充填剤を含まないポリマー材料の熱伝導率を、好ましくは少なくとも $1.3 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.013 W/cm)、より好ましくは少なくとも $1.6 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.016 W/cm)、更により好ましくは少なくとも $2.0 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.02 W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも $2.5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ (0.025 W/cm) 上回る。

【0057】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体の割合は、ポリマー / 窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは少なくとも 5 体積%、より好ましくは少なくとも 10 体積%、より好ましくは少なくとも 20 体積%、及び特に好ましくは少なくとも 30 体積% である。

30

【0058】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体の割合は、ポリマー / 窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは 70 体積% を超えない、より好ましくは 60 体積% を超えない、及び特に好ましくは 50 体積% を超えない。

【0059】

熱可塑的に加工可能なポリマーが、本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物のためのポリマーとして使用される。これらは、具体的には、熱可塑性材料であるポリアミド (PA)、ポリフェニレンサルファイド (PPS)、ポリカーボネート (PC)、ポリプロピレン (PP)、熱可塑性エラストマー (TPE)、熱可塑性ポリウレタンエラストマー (TPU)、及びポリエーテルエーテルケトン (PEEK)、液晶ポリマー (LCP)、並びにポリオキシメチレン (POM) である。熱可塑的に加工することができるデュロプラスチック成型材料も、ポリマーとして使用され得る。

40

【0060】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物のために使用される窒化ホウ素凝集体は、高い凝集体安定性を有する。ポリマーが窒化ホウ素充填剤と一緒に化合されるときに生じるもの、特に高充填剤装填を有するポリマー等の高い凝集体安定性を有する窒化ホウ素凝集体は、高剪断力の影響下であっても、部分的にのみ一次粒子又は凝集体断片に分解される。本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物の有利な特性、特に異方性比は、一部の分解にもかかわらず、維持される。

【0061】

50

レーザー粒度分布によって凝集体の大きさを測定すると同時に、例えば、超音波実験で凝集体の安定性を試験することができるが、超音波の影響により凝集体は経時に崩壊する。経時的な凝集体の大きさの変化により凝集体の崩壊が記録され、凝集体の安定性によって異なる曲面が形成される。軟質の凝集体は、機械的に更に安定した凝集体よりも速く崩壊する。

【0062】

凝集体安定性の測定のために、 $200\text{ }\mu\text{m}$ よりも小さい窒化ホウ素凝集体は分割され、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 未満の微粉は、篩分けによって除去される。このようにして得られる $100\sim200\text{ }\mu\text{m}$ の篩分留物上で、レーザー粒度計（分散装置 Hydro 2000S を備えた Mastersizer 2000, Malvern, Herrenberg, Germany）により凝集体安定性が決定される。そのため、湿潤剤を含む水溶液（ 10 L 蒸留水中にリンス液（G 530 Spulfix、BUZIL-Werk Wagner GmbH & Co. KG, Memmingen） 2 mL と Imbentin（ポリエチレングリコールアルキルエーテル） 0.375 mL とを含む混合物）を分散媒質として用いる。スナップオンキャップを有するバイアル瓶（ 8 mL ）中で、 $10\sim20\text{ mg}$ の凝集体を 6 mL の分散媒質で振盪により分散させる。試料から懸濁液をピペットで抜き取り、レーザー掩蔽が 5% （特定範囲： $5\sim30\%$ ）に達するまでレーザー粒度計の湿式セルに滴下する。測定は超音波を用いずに開始し、 15 秒毎 に超音波を用いて更に測定を行うが、分散装置の超音波出力（デバイスソフトウェアによって値を $0\sim100\%$ に設定することができる）は、いずれの場合も最大出力の 5% に設定する。測定は合計 10 回行う。測定時、分散装置の攪拌器は、 1750 RPM で動作する。 10 回測定後の d_{90} 値と最初の測定の d_{90} 値との商を、凝集安定性の度合として用いる（ 100 を掛けて%で示す）。本明細書に記載される測定方法は、以後、「超音波法」とも称される。

【0063】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品のために使用される窒化ホウ素凝集体の凝集体安定性は、好ましくは少なくとも 40% 、より好ましくは少なくとも 50% 、特に好ましくは少なくとも 60% である。この場合、凝集体安定性は、上述の超音波法を使用して決定される。

【0064】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品のために使用されることが好ましい鱗片状の窒化ホウ素凝集体の比表面（BET）は、好ましくは $20\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは $10\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。

【0065】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品のために使用される窒化ホウ素凝集体は、凝集していない窒化ホウ素粉末とは対照的に、注ぐことが可能であり、容易に投与することができる。

【0066】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の好ましい実施形態では、ほとんどが等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体が、窒化ホウ素凝集体として使用される。これらの窒化ホウ素凝集体は、小板形状の六方晶一次窒化ホウ素粒子の凝集体であり、この六方晶一次窒化ホウ素粒子は、無機結合相によって互いに結合している。無機結合相は、少なくとも 1 つの窒化物及び／又はオキシ窒化物を含む。窒化物及びオキシ窒化物は、好ましくは、アルミニウム元素、ケイ素元素、チタン元素、及びホウ素元素の化合物である。これらの窒化ホウ素凝集体はまた、等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体、又は窒化結合相を有する等方性の窒化ホウ素凝集体とも称され得る。これらの凝集体における窒化ホウ素小板は、互いに対して好ましい方向を有さずに本質的に配向され、それは、それらが等方性特性を本質的に有することを意味する。等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体はまた、以下で、窒化ホウ素ハイブリッド凝集体とも称される。

【0067】

そのような窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体の生成に関して、一次窒化ホウ素

10

20

30

40

50

粒子又は非晶質窒化ホウ素の形態の窒化ホウ素供給原料粉末は、結合相原材料と混合され、顆粒又は成形小片に加工され、次いで、これらは、窒化雰囲気中少なくとも1,600℃の温度で処理され、得られた顆粒又は成形小片は、次いで、粉碎されるか、及び／又は該当する場合は、分留される。

【0068】

結合相に含有される窒化物及びオキシ窒化物は、好ましくは窒化アルミニウム(AlN)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、及び窒化ホウ素(BN)、好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び／又は窒化ケイ素、更に好ましくは窒化アルミニウム及び／又はオキシ窒化アルミニウムである。結合相は、特に好ましくは、窒化アルミニウムを含有する。

10

【0069】

結合相の窒化物及びオキシ窒化物は、非晶質、部分的結晶質、又は結晶質であってよい。結合相は、好ましくは結晶質である。

【0070】

窒化結合相はまた、酸化ホウ素(B₂O₃)、酸化アルミニウム(Al₂O₃)、二酸化ケイ素(SiO₂)、二酸化チタン(TiO₂)、酸化イットリウム(Y₂O₃)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、及び希土類金属酸化物等の酸化物相を含んでもよい。

20

【0071】

更に、結合相はまた、ホウ酸アルミニウム又はホウ酸カルシウム等のホウ酸塩を含有してもよい。加えて、結合相はまた、炭素、金属不純物、ホウ素元素、ホウ化物、ホウ素炭化物、又は炭化ケイ素等のその他の炭化物等の不純物を含有してもよい。

【0072】

窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体中の窒化結合相の割合は、窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、好ましくは少なくとも1重量%、より好ましくは少なくとも5重量%、更により好ましくは少なくとも10重量%、更により好ましくは少なくとも20重量%、及び特に好ましくは少なくとも30重量%である。

30

【0073】

結合相中の窒化物及びオキシ窒化物の割合は、総結合相に基づいて、好ましくは少なくとも50重量%、及び特に好ましくは少なくとも80重量%である。

【0074】

結合相は、結合剤を含まない凝集体と比べてより機械的に安定した凝集体が得られるよう、凝集体中の一次窒化ホウ素粒子と結合する。

【0075】

窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体は、生成方法によって、球状に丸められてもよく、又はブロック化して角があつてもよい。噴霧乾燥によって生成される凝集体は、窒化後であつても球状に丸みを保ち続ける。締固め及び粉碎によって生成される凝集体は、ブロック化した又は塊状の、角若しくは縁のある形状を有する傾向がある。

【0076】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物を生成する場合、使用されることが好ましい窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体は、1000μm以下、より好ましくは500μm以下、更により好ましくは400μm以下、更により好ましくは300μm以下、及び更により好ましくは200μm以下の平均凝集体直径(d₅₀)を有する。平均凝集体直径(d₅₀)は、レーザー回折(湿式測定、Master sizer 2000, Malvern)によって決定することができる。平均凝集体直径は、凝集体生成において使用される一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも少なくとも2倍大きく、好ましくは少なくとも3倍大きい。平均凝集体直径はまた、凝集体生成において使用される一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも10倍大きい、又は50倍以上大きい場合もある。窒化結合された等方性の窒化物凝集体中の一次粒子の平均粒径(d₅₀)は、50μm以下、好ましくは30μm以下、より好ましくは15μm以下、更により好ましくは10μm以下、及び特

40

50

に好ましくは $6 \mu\text{m}$ 以下である。

【0077】

ポリマー / 窒化ホウ素化合物の化合において使用される窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体は、1.0 ~ 1.8、好ましくは1.0 ~ 1.5のアスペクト比を有する。

【0078】

窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体は、高密度の窒化ホウ素凝集体である。

【0079】

窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体中の個々の小板形状の一次窒化ホウ素粒子間に、直接接触点が存在し、一次窒化ホウ素粒子からなる窒化ホウ素凝集体中に連続した熱伝導経路をもたらす。

10

【0080】

六方晶窒化ホウ素、非晶質窒化ホウ素、部分結晶質窒化ホウ素、及びそれらの混合物が、窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体を生成するための窒化ホウ素供給原料粉末として使用され得る。

【0081】

使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 (d_{50}) は、 $0.5 \sim 50 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.5 \sim 15 \mu\text{m}$ 、及びより好ましくは $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$ であってよい。例えば、 $1 \mu\text{m}$ 、 $3 \mu\text{m}$ 、 $6 \mu\text{m}$ 、 $9 \mu\text{m}$ 、及び $15 \mu\text{m}$ の平均粒径を有する六方晶窒化ホウ素粉末が使用されてよいが、最大 $50 \mu\text{m}$ のより大きな平均粒径も可能である。異なる粒径を有する異なる六方晶窒化ホウ素粉末の混合物が、同様に使用されてよい。使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 (d_{50}) の測定は、典型的には、レーザー回折（湿式測定、Mastersizer 2000, Malvern）によって行われる。

20

【0082】

B_2O_3 を有さない窒化ホウ素粉末及び最大 0.5 重量 % の低 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよいが、最大 10 重量 % 及びそれ以上の高 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよい。

【0083】

結合相原材料は、固体又は液体又はペースト状の形態で存在してよい。

【0084】

窒化ホウ素供給原料粉末と結合相原材料との混合は、例えば、混合ドラム、Vミキサー、ドラムフープミキサー、振動管ミル、又はErich Miessnerで行うことができる。その後のミリング工程で、例えば、十字型ハンマーミル、回転ミル、攪拌型ビーズミルにおいて、均質性を更に向上させてもよい。粉末混合物は乾燥していても湿っていてもよい。圧搾助剤、及び必要に応じて潤滑助剤を添加することも可能である。例えば、後続の顆粒の作製を噴霧乾燥又は粒子成長造粒法で行う場合、混合は湿式で行われてもよい。

30

【0085】

還元剤と組み合わせた金属化合物が、還元窒化を介して生成される窒化結合相を生成するための結合相原材料として使用されてもよい。使用される金属化合物は、好ましくは、アルミニウム元素、ケイ素元素、及びチタン元素からの化合物、好ましくは、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、水酸化アルミニウム ($\text{Al}(\text{OH})_3$)、ベーマイト (AlOOH)、二酸化ケイ素 (SiO_2)、及び二酸化物チタン (TiO_2) 等の酸化物及び / 又は水酸化物である。金属化合物はまた、ホウ酸アルミニウム等のホウ酸塩であってもよい。還元剤としては、炭素及び水素だけでなく、例えばポリビニルブチラール (PVB)、メラミン及びメタンなどの有機化合物も使用してよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、該物質は窒化雰囲気に添加する。還元に必要な還元剤が金属化合物中に既に存在していることもあり、そのため、例えば、アルミニウムイソプロポキシド、テトラエチルオルトケイ酸塩、又はチタンイソプロポキシドを結合原材料として用いる場合は、追加の還元剤を用いる必要がない。窒化工程では、金属化合物を対応する金属窒化物へ転換する。窒化中にオキシ窒化物又は金属窒化物とオキシ窒化物との混合物が形成される可能性もあり、同様に、結合相が、残留する未反応酸化物を依然とし

40

50

て含有することがある。

【0086】

窒化ホウ素を生成するための反応物はまた、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するための結合相原材料としても使用され得る。窒化ホウ素を生成するための反応物は、酸化ホウ素供給源、例えば、ホウ酸(H_3BO_3)及び酸化ホウ素(B_2O_3)と、還元剤、例えば炭素若しくは水素又はポリビニルアルコール(PVA)、ポリビニルブチラール(PVB)、メラミン及びメタン等の有機化合物と、を組み合わせて含んでもよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、該物質は窒化雰囲気に添加する。また、例えば、ホウ素元素、炭化ホウ素、及びホウ酸トリメチル等の実質的に酸素を含まないホウ素供給源が、窒化ホウ素を生成するための反応物として使用されてもよい。窒化工程では、これら原材料を六方晶窒化ホウ素に転換する。

10

【0087】

異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するために使用される結合相原材料はまた、窒化雰囲気下での加熱処理中に固化する窒化材料であってもよい。窒化材料は、アルミニウム若しくはケイ素の窒化物及び/又はオキシ窒化化合物であってもよいが、窒化チタン及び希土類窒化物も使用されてよく、サイアロンからなる群からの化合物も同様である。液体相、例えば酸化イットリウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化ケイ素及び希土類酸化物などを焼結剤として用いてもよい。

20

【0088】

列挙される異なる結合相原材料の混合物を使用することも可能である。

【0089】

所望の凝集体の大きさへの窒化雰囲気下での加熱処理後、後続の粉碎及び/又は分留工程において、成形小片又は顆粒は、必要に応じて粉碎又は分留され、それにより、本発明による窒化結合凝集体を生成する。最終の凝集体の大きさが、原材料の造粒中に既に達成された場合、例えば、造粒が噴霧乾燥又は粒子成長造粒法によって行われた場合、窒化後の粉碎工程は行われない。

30

【0090】

窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体の標的となる凝集体の大きさを達成するために、スクリーニング、スクリーン分留、及び篩分け等の慣習的工程が行われてもよい。微粉が含まれている場合は、それを最初に取り除いてもよい。スクリーニングの代替として、規定された凝集体の粉碎はまた、篩網、分類ミル、構造化ローラークラッシャー、及び切削ホイールを用いて行われてもよい。例えば、ボールミル内での粉碎も可能である。

【0091】

それらの生成に続いて、窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体は、更なる処理を受けてもよい。この場合、例えば、次の可能な処理のうちの1つ以上が行われてもよい。

- 窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体の表面酸化をもたらす酸素下での加熱処理。例えば、凝集体に、500を超える空气中での酸化によって、窒化チタン(TiN)を含有する結合相では表面 TiO_2 が生成され得、窒化ケイ素(Si_3N_4)を含有する結合相では表面 SiO_2 が生成され得、窒化アルミニウム(AlN)を含有する結合相では表面酸化アルミニウム(Al_2O_3)が生成され得る。

40

- 水蒸気処理

- 室温で、又は熱の影響下で、かつキャリア又は反応ガスを用いた、シラン、チタン酸塩、又はその他の有機金属化合物による表面改質。この表面改質はまた、窒化結合相の耐加水分解性も上昇させる。

- ポリマー、例えば、ポリエチレンゴリコール(PEG)、ポリビニルアルコール(PVA)、ポリビニルブチラール(PVB)、ポリビニルピロリドン(PVP)、コポリマー、アクリレート、オイル、又はカルボン酸による表面改質。

- ゾルゲル系、例えば、ベーマイトゾル又は SiO_2 ゾルによる溶浸、あるいは水溶性ガラス若しくはナノ粒子、又は表面改質ナノ粒子、又はこれらの混合物による溶浸。

50

- 水又はエタノール溶解性ポリマーによる溶浸。窒化ホウ素凝集体は、例えば、シリコーン、エポキシ、若しくはポリウレタン樹脂等の樹脂で溶浸されてもよく、その樹脂は、化合前若しくは化合中に、硬化剤で硬化されてもよいし、又は熱硬化されてもよい。

【0092】

列挙された表面処理はまた、窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体と、例えば、一次窒化ホウ素粒子等の他の窒化ホウ素充填剤との混合物に対して行われてもよい。

【0093】

前記処理のうちいくつかを任意の順序で組み合わせることも可能である。例えば、処理を流動床法で行ってもよい。

【0094】

列挙された処理を用いて、ポリマーマトリックスの窒化結合された等方性凝集体へのカップリングを改善することが可能である。

【0095】

他の点では同等の加工条件下で、窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体の平面貫通方向熱伝導率は、凝集していない小板形状の窒化ホウ素の使用と比較して、30体積%の充填剤装填によって40%超、及び40体積%の充填剤装填によって70%超上昇され得る。これらの上昇が、二軸スクリュー押出機における粗い化合によって、また薄いプレートの射出成形時にも達成されることは、特に驚くべきことである。

【0096】

本発明による構成部品及びポリマー / 窒化ホウ素化合物の更なる好ましい実施形態では、実質的に異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体が窒化ホウ素凝集体として使用される。これらの窒化ホウ素凝集体は、小板形状の六方晶一次窒化ホウ素粒子を含む凝集体であり、この粒子は一緒に凝集して、鱗片状の窒化ホウ素凝集体を形成する。これらの窒化ホウ素凝集体は、鱗片状の窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素薄片とも称される。これらの窒化ホウ素薄片は、凝集していない小板形状の一次窒化ホウ素粒子とは区別されるべきであり、しばしば、英字文献においては「薄片状窒化ホウ素粒子 (flaky boron nitride particles)」と称される。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の構造は、多くの個々の窒化ホウ素小板から構成される。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに向かって無作為に配向されていない。鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を含み、その小板平面は、互いに対し平行に整列している。小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、その一次窒化ホウ素粒子の小板平面が互いに実質的に平行に整列するように一緒に凝集されるのが好ましい。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに対し無作為に配向されていないことから、鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、異方性特性を有する。

【0097】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子の整列の度合いは、組織指数で特徴付けることができる。完全な等方性整列の小板形状の一次窒化ホウ素粒子を有する、つまり、任意の特定の方向を優先することのない、六方晶窒化ホウ素 (hBN) の組織指数は、1である。組織指数は、試料における配向の度合いとともに上昇する、つまり、より多くの小板形状の一次窒化ホウ素粒子が、互いに重ねられる、若しくは互いにそれらの基底面に平行に整列するか、又は一次窒化ホウ素粒子のより多くの小板平面が、互いに平行に整列する。本発明による構成部品に使用される異方性鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数は、好ましくは、2.0超、より好ましくは2.5以上、更により好ましくは3.0以上、及び特に好ましくは3.5以上の値である。凝集体の組織指数は、5.0以上及び10.0以上の値を有してもよい。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数は、好ましくは200以下の値、より好ましくは50以下の値である。組織指数はX線透過試験によって測定する。そのため、X線回折図を測定することによって、(002)及び(100)回折反射の強度の比を決定し、それを、表面粗さのない理想的なhBN試料の相当する比で除す。理想的な比は、JCPDSデータから求めることができ、それは7.29である。

10

20

30

40

50

【0098】

窒化ホウ素凝集体の組織指数(TI)は、次の式により算出することができる。

【0099】

【数1】

$$TI = \frac{I_{(002)} \text{、試料} / I_{(100)} \text{、試料}}{I_{(002)} \text{、理論上} / I_{(100)} \text{、理論上}} = \frac{I_{(002)} \text{、試料} / I_{(100)} \text{、試料}}{7.29}$$

10

窒化ホウ素凝集体のX線回折図の(002)及び(100)回折反射の強度の比率 $I_{(002)} / I_{(100)}$ を7.29で除す。窒化ホウ素凝集体の組織指数は、バルク窒化ホウ素凝集体上で測定される。測定は、20の温度で行われる。

【0100】

組織指数が、約 3.5 cm^2 (鱗片状の凝集体の上面又は底面の面積に基づいて)の大きさを有する大きい鱗片状の個々の凝集体において決定される場合、100以上及び最大約500の非常に高い組織指数の値が、得られ得る。大きい鱗片状の凝集体上で測定されるこれらの値は、鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の一次粒子の非常に強い整列の証拠である。本発明による構成部品及びポリマー/窒化ホウ素化合物に使用されることが好ましい鱗片状の窒化ホウ素凝集体上で組織指数を測定する場合、それは、既に上述された凝集体充填物上で行われ、X線放射線像測定において、部分的に静的整列が試料担体中に生じる。したがって、1mm以下の大さを有するより小さい鱗片状の凝集体上で得られる組織指数値は、個々の鱗片状の凝集体中の対応する配向の一次粒子よりも常に低い。

20

【0101】

本発明による構成部品及び窒化ホウ素/ポリマー化合物に使用される等方性の窒化結合凝集体の組織指数は、好ましくは、1.0~2.0未満の値である。

【0102】

本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物及び構成部品において、使用されることが好ましい異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、 $1000 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $500 \mu\text{m}$ 以下、更により好ましくは $300 \mu\text{m}$ 以下、及び特に好ましくは $200 \mu\text{m}$ 以下の平均凝集体直径(d_{50})を有する。本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物及び構成部品で使用される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の平均凝集体直径(d_{50})は、好ましくは $20 \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $30 \mu\text{m}$ 以上、更により好ましくは $50 \mu\text{m}$ 以上、及び特に好ましくは $100 \mu\text{m}$ 以上である。平均凝集体直径(d_{50})は、レーザー回折(湿式測定、Mastersizer 2000, Malvern)によって決定することができる。平均凝集体直径は、凝集体生成において使用される一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも少なくとも2倍大きく、好ましくは少なくとも3倍大きい。平均凝集体直径はまた、凝集体生成において使用される一次窒化ホウ素粒子の平均粒径よりも10倍大きい、又は50倍以上大きい場合もある。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の一次粒子の平均粒径(d_{50})は、 $50 \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $30 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $15 \mu\text{m}$ 以下、更により好ましくは $10 \mu\text{m}$ 以下、及び特に好ましくは $6 \mu\text{m}$ 以下である。

30

【0103】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚みは、 $500 \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $200 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $100 \mu\text{m}$ 以下、更により好ましくは $70 \mu\text{m}$ 以下、更により好ましくは $50 \mu\text{m}$ 以下、及び特に好ましくは $35 \mu\text{m}$ 以下である。厚みは、少なくとも $1 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $2 \mu\text{m}$ 以上、更により好ましくは $3 \mu\text{m}$ 以上、及び特に好ましくは $5 \mu\text{m}$ 以上である。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚みは、デジタル精密計器又は走査型電子顕微鏡(SEM)を使用して決定することができる。

40

【0104】

50

アスペクト比、つまり、鱗片状の窒化ホウ素凝集体の凝集体の厚みに対する凝集体の直径の比は、凝集体の直径及び厚みを測定することによって走査型電子顕微鏡（S E M）画像を用いて決定することができる。鱗片状の凝集体のアスペクト比は、1超の値、好ましくは2以上の値、より好ましくは3以上の値、及び特に好ましくは5以上の値を有する。

【0105】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、高密度の窒化ホウ素凝集体である。

【0106】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の個々の小板形状の一次窒化ホウ素粒子間に直接接触点が存在して、一次窒化ホウ素粒子から構成される窒化ホウ素凝集体中に連続した熱伝導経路をもたらす。

10

【0107】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物に使用される鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、粉碎によってではなく成形加工によって直接生成されたそれらの上側及び底側に表面を有する。これらの表面は、以後「成形表面」と称される。成形表面は、破断工程又は粉碎工程によって作製された凝集体の粗い側面（破断面）とは対照的に比較的滑らかである。鱗片状の窒化ホウ素凝集体の表面は、実質的に平坦（平面）であり、それらの上側及び底側は、互いに実質的に平行である。

【0108】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総表面面積中の成形表面の割合は、平均で、丸い基部を有する小板又は鱗片形状と仮定すれば、少なくとも33%（凝集体の直径が、その高さと等しい場合）であり、四角い基部を有する小板又は鱗片形状と仮定すれば、同様に少なくとも33%（凝集体が立方体形状の場合）である。高いアスペクト比を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体に関しては、総表面面積中の成形表面の割合は相当高く、3.0超のアスペクト比を有する凝集体に関しては、割合は、典型的には60～95%であり、極めて大きい凝集体に関しては、割合は、更に高い場合もある。凝集体を丸めることによって、又は更にスクリーニング若しくは寸法決めプロセスの結果として、総表面面積中の成形表面の割合が低減され得るが、その割合は、一般的に、常に少なくとも10%、好ましくは少なくとも20%である。

20

【0109】

総表面面積に対する成形表面の比率は、S E M画像を分析することによって決定することができる。そのようにすることで、凝集体の直径及び厚みに対して計算される値を使用して、アスペクト比を決定することができる。これらの値から、総表面面積中の成形表面の割合は、以下のように計算される。

30

$$\text{成形表面の割合 [\%]} = ((2 \times \text{端面}) / \text{総表面面積}) \times 100$$

式中、

$$\text{端面} = \text{凝集体直径} \times \text{凝集体の直径}$$

$$\text{総表面面積} = 2 \times \text{端面 (end phase)} + 4 \times \text{側面}$$

$$\text{側面} = \text{凝集体の厚み} \times \text{凝集体の直径}$$

【0110】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の生成に関して、任意に結合相原材料と混合される一次窒化ホウ素粒子又は非晶質窒化ホウ素の形態の窒化ホウ素供給原料粉末は、成形工程において鱗片状の凝集体に加工され、その後、加熱処理工程である高温焼鈍に供され、得られた鱗片状の凝集体は、その後必要に応じて、粉碎及び／又は分留される。

40

【0111】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、単軸圧縮又はローラー締固めによって乾燥若しくは加湿粉末混合物を圧迫することによって成形される。

【0112】

成形に関して、窒化ホウ素供給原料粉末又は窒化ホウ素供給原料粉末及び結合相原材料からなる粉末混合物は、好ましくは、2つの逆回転ローラー間で圧迫される。ローラー間の隙間内で、接触力は、1cm当たり、0.5kN以上、好ましくは1kN以上、より好

50

ましくは 2 kN 以上、更により好ましくは 3 kN 以上、更により好ましくは 5 kN 以上、最も好ましくは 7 kN 以上、及び特に好ましくは 10 kN 以上のロール間隙長に設定する。ローラーの接触力は、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の密度に影響する。高い接触力を用いて、窒化ホウ素原材料の一部は非晶質になり、その後の高温焼鈍中に再結晶化する。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の生成は、微細構造ローラーを使用する際にも生じ得る。

【 0 1 1 3 】

生成された凝集体の残留水分は、約 100 で乾燥することによって、更なる加熱処理又は窒化の前に除去することができる。

【 0 1 1 4 】

鱗片状の凝集体に締め固められた材料は、加熱処理工程である高温焼鈍に供される。鱗片状の凝集体が、結合相原材料を添加することなく、窒化ホウ素供給原料粉末、つまり、一次窒化ホウ素粒子又は非晶質窒化ホウ素のみを使用して生成される場合、鱗片状の凝集体の高温焼鈍は、少なくとも 1600 、好ましくは少なくとも 1800 の温度で行われる。

【 0 1 1 5 】

必要に応じて、得られた鱗片状の凝集体は、その後、更に粉碎及び / 又は分留されてもよい。

【 0 1 1 6 】

締め固め中の接触力の増加及び加熱処理中の温度の上昇に伴い、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を使用して本発明によるポリマー / 窒化ホウ素化合物から生成された 2 mm の厚みを有する薄いプレート上で測定される異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性も、熱伝導率と同様に上昇する。

【 0 1 1 7 】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を生成する際、更なる添加剤を伴わずに窒化ホウ素粉末を使用して、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体に加工することができる。好ましくは、六方晶窒化ホウ素粉末及びその他の粉末からなる混合物が使用され、このようにして、窒化ホウ素及び二次相（「窒化ホウ素ハイブリッド薄片」）からなる異方性の鱗片状の混合凝集体を生成する。異方性の鱗片状の混合凝集体を生成するために六方晶窒化ホウ素粉末に更に添加された粉末は、無機結合相を生成するための結合相原材料であり得る。異方性の鱗片状の混合凝集体において、六方晶一次窒化ホウ素粒子は、二次相である無機結合相によって互いに結合されている。

【 0 1 1 8 】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体の無機結合相は、少なくとも 1 つの炭化物、ホウ化物、窒化物、酸化物、水酸化物、金属、又は炭素を含む。

【 0 1 1 9 】

結合相を含まない異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体においてそうであるように、小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、これらの鱗片状の混合凝集体中で無作為に配向されていない。鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を含み、その小板平面は、互いに対して平行に整列している。小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、その一次窒化ホウ素粒子の小板平面が互いに実質的に平行に整列するように、好ましくは一緒に凝集される。これらの凝集体中の小板形状の一次窒化ホウ素粒子は、互いに対して無作為に配向されていないことから、鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、異方性特性を有する。

【 0 1 2 0 】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体中の結合相（窒化ホウ素ハイブリッド薄片）は、一次窒化ホウ素粒子間に位置するが、少なくとも部分的に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片の表面上に位置するか、又は表面面積の大部分を覆ってもよい。結合相は、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中の一次窒化ホウ素粒子を結合し、結合剤を有さない凝集体に比べて機械的により安定した凝集体を得ることができるようとする。

【 0 1 2 1 】

10

20

30

40

50

異方性の鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体は、いずれの場合も鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、好ましくは少なくとも1%、より好ましくは少なくとも5%、更により好ましくは少なくとも10%、更により好ましくは少なくとも20%、及び特に好ましくは少なくとも30%の結合相割合を有する。

【0122】

無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の高温焼鈍は、少なくとも1000°の温度で行われる。

【0123】

更なる好ましい実施形態では、異方性の鱗片状の混合凝集体の無機結合相は、少なくとも1つの窒化物及び/又はオキシ窒化物を含む。窒化物又はオキシ窒化物は、好ましくはアルミニウム元素、ケイ素元素、チタン元素及びホウ素元素の化合物である。10

【0124】

これらの窒化ホウ素混合凝集体はまた、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体、又は窒化結合相を有する異方性の窒化ホウ素凝集体とも称され得る。

【0125】

結合相中に含有される窒化物及びオキシ窒化物は、好ましくは窒化アルミニウム(AlN)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、及び/又は窒化ホウ素(BN)、より好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び/又は窒化ケイ素、更により好ましくは窒化アルミニウム及び/又はオキシ窒化アルミニウムである。結合相は、特に好ましくは、窒化アルミニウムを含有する。20

【0126】

結合相の窒化物及びオキシ窒化物は、非晶質、部分的結晶質、又は結晶質であってよい。結合相は、それが、本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物及び本発明による構成部品において、より高い熱伝導率の値を達成することを可能にするため、好ましくは結晶質である。

【0127】

窒化物及び/又はオキシ窒化物を含有する結合相は、更に、例えば、酸化ホウ素(B₂O₃)、酸化アルミニウム(Al₂O₃)、二酸化ケイ素(SiO₂)、二酸化チタン(TiO₂)、酸化イットリウム(Y₂O₃)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、及び希土類金属酸化物等の酸化物相を含有してもよい。30

【0128】

その上、結合相はまた、ホウ酸塩、例えばホウ酸アルミニウム又はホウ酸カルシウムを更に含有してもよい。加えて、結合相はまた、不純物、例えば、炭素、金属不純物、ホウ素元素、ホウ化物、炭化ホウ素、又は例えば炭化ケイ素等の他の炭化物を含有してもよい。

【0129】

結合相中の窒化物及びオキシ窒化物の割合は、総結合相に基づいて、好ましくは少なくとも50重量%、特に好ましくは少なくとも80重量%である。

【0130】

結合相は、好ましくは、総結合相に基づいて、50重量%以上の割合で、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、若しくは窒化チタン、又はそれらの混合物を含有する。結合相は、総結合相に基づいて、好ましくは90重量%以上の割合で、特に好ましくは、窒化アルミニウムを含有する。40

【0131】

金属粉末は、好ましくは、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するための結合相原材料として使用され、金属粉末は、直接窒化によって、対応する金属窒化物若しくはオキシ窒化物又は金属窒化物とオキシ窒化物との混合物に転換される。使用される金属粉末は、好ましくはアルミニウム、ケイ素、若しくはチタン粉末、又はそれらの混合物である。アルミニウム粉末が使用されることが、特に好ましい。窒化工程で

は、金属を対応する金属窒化物に転換させる。窒化中にオキシ窒化物又は金属窒化物とオキシ窒化物との混合物が形成される可能性もある。

【0132】

還元剤と組み合わせた金属化合物が、還元窒化を介して生成される窒化結合相である異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するための結合相原材料として使用されてもよい。使用される金属化合物は、好ましくは、アルミニウム元素、ケイ素元素、及びチタン元素からの化合物、好ましくは、例えば、酸化アルミニウム(Al_2O_3)、水酸化アルミニウム($\text{Al}(\text{OH})_3$)、ベーマイト(AlOOH)、二酸化ケイ素(SiO_2)、及び二酸化物チタン(TiO_2)等の酸化物並びに/又は水酸化物である。使用される金属化合物は、ホウ酸塩、例えばホウ酸アルミニウムであってもよい。還元剤としては、炭素及び水素だけでなく、例えばポリビニルブチラール(PVB)、メラミン及びメタンなどの有機化合物も使用してよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、これらの物質は窒化雰囲気に添加される。還元に必要な還元剤が金属化合物中に既に存在していることもあり、そのため、例えば、アルミニウムイソプロポキシド、テトラエチルオルトケイ酸塩、又はチタンイソプロポキシドを結合原材料として用いる場合は、追加の還元剤を用いる必要がない。窒化工程では、金属化合物を対応する金属窒化物に転換させる。窒化中にオキシ窒化物又は金属窒化物とオキシ窒化物との混合物が形成される可能性もあり、同様に、結合相が、残留する未反応酸化物を依然として含有することもある。

【0133】

窒化ホウ素を生成するための反応物はまた、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するための結合相原材料としても使用され得る。窒化ホウ素を生成するための反応物は、酸化ホウ素供給源、例えばホウ酸(H_3BO_3)及び酸化ホウ素(B_2O_3)と、還元剤、例えば炭素若しくは水素又はポリビニルアルコール(PVA)、ポリビニルブチラール(PVB)、メラミン及びメタン等の有機化合物と、を組み合わせて含有してもよい。例えば、水素又はメタン等のガス状物質を還元剤として使用する場合、これらの物質は窒化雰囲気に添加する。また、例えば、ホウ素元素、炭化ホウ素、及びホウ酸トリメチル等の実質的に酸素を含まないホウ素供給源が、窒化ホウ素を生成するための反応物として使用されてもよい。窒化工程では、これらの原材料を六方晶窒化ホウ素に転換させる。

【0134】

異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の窒化結合相を生成するために使用される結合相原材料はまた、窒化雰囲気下での加熱処理中に固化する窒化材料であってもよい。窒化材料は、アルミニウム若しくはケイ素の窒化物及び/又はオキシ窒化化合物であってもよいが、窒化チタン及び希土類窒化物も使用されてよく、サイアロンからなる群からの化合物も同様である。液体相、例えば酸化イットリウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化ケイ素及び希土類酸化物などを焼結剤として用いてもよい。

【0135】

列挙される異なる結合相原材料の混合物を使用することも可能である。

【0136】

六方晶窒化ホウ素、非晶質窒化ホウ素、部分結晶質窒化ホウ素、及びそれらの混合物が、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体を生成するための窒化ホウ素供給原料粉末として使用されてもよい。

【0137】

使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 d_{50} は、0.5~50 μm、好ましくは0.5~15 μm、より好ましくは0.5~5 μmであってよい。例えば、1 μm、3 μm、6 μm、9 μm、及び15 μmの平均粒径を有する六方晶窒化ホウ素粉末が使用されてもよいが、最大50 μmのより大きな平均粒径も可能である。異なる粒径を有する異なる六方晶窒化ホウ素粉末の混合物が、同様に使用され得る。

【0138】

10

20

30

40

50

使用される窒化ホウ素粉末の平均粒径 (d_{50}) の測定は、典型的には、レーザー回折(湿式測定、Master sizer 2000, Malvern)によって行われる。

【0139】

B_2O_3 を有さない窒化ホウ素粉末及び最大 0.5 重量 % の低 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよいが、最大 10 重量 % 及びそれ以上の高 B_2O_3 含有量の窒化ホウ素粉末が用いられてもよい。粉末化又は造粒窒化ホウ素の混合物も使用可能である。結合相原材料は、固体又は液体又はペースト状の形態で存在し得る。

【0140】

窒化ホウ素供給原料粉末と結合相原材料との混合は、例えば、混合ドラム、V ミキサー、ドラムフープミキサー、振動管ミル、又は Eirich ミキサーで行うことができる。その後のミリング工程(例えば、十字型ハンマーミル、回転ミル、攪拌型ビーズミル)で均質性を更に向上させてもよい。粉末混合物は乾燥していても湿っていてもよい。さらには、圧搾助剤そして必要に応じて潤滑助剤を添加することも可能である。例えば、後続の顆粒の作製を噴霧乾燥又は粒子成長造粒法で行う場合、混合は湿式で行われてもよい。

10

【0141】

鱗片状の凝集体に締め固められた材料は、その後、少なくとも 1600 、好ましくは少なくとも 1800 の温度の窒化雰囲気下で高温焼鈍に供される。窒化雰囲気は、好ましくは、窒素及び / 又はアンモニアを含む。窒化雰囲気は、好ましくは、更にアルゴンを含有する。最大温度に達した後、最大数時間又は数日の保持時間が、開始され得る。加熱処理は、連続法又はバッチ法で行うことができる。

20

【0142】

窒化雰囲気下での加熱処理によって、窒化結合相は、一次窒化ホウ素粒子を互いに結合する二次相として形成される。窒化工程によって、一次粒子の結晶化度を増大させることができ、それは一次粒子の成長を伴う。

【0143】

異方性の窒化結合された窒化ホウ素混合凝集体中の結合相において窒化中に未反応の原材料の残留物は、好ましくは 10 % 以下、より好ましくは 5 % 以下、更により好ましくは 3 % 以下、及び特に好ましくは 2 % 以下である。酸素の混入は、好ましくは 10 % 以下、より好ましくは 5 % 以下、更により好ましくは 2 % 以下、及び特に好ましくは 1 % 以下である。

30

【0144】

高温処理の前に、鱗片状の凝集体に締め固められた材料は、好ましくは、窒化雰囲気下で少なくとも 700 の温度で更なる加熱処理に供され、この第 1 の加熱処理の温度は、高温処理の温度を下回る。この初期窒化の窒化雰囲気は、好ましくは、窒素及び / 又はアンモニアを含む。窒化雰囲気は、好ましくは、更にアルゴンを含有する。

【0145】

温度及び加熱処理時間の上昇に伴って、結晶化度は、鱗片状の窒化ホウ素混合凝集体に含有される一次窒化ホウ素粒子中で上昇し、存在する一次窒化ホウ素粒子の酸素含有量及び比表面面積は、減少する。

40

【0146】

鱗片状の窒化ホウ素凝集体の標的となる凝集体の大きさを達成するために、スクリーニング、スクリーン分留、及び篩分け等の慣習的工程が行われてもよい。微粉が含まれている場合は、それを最初に取り除いてもよい。スクリーニングの代替として、規定された凝集体の粉碎は、篩網、分類ミル、構造化ローラークラッシャー又は切削ホイールを用いて行ってもよい。例えば、ボールミル内での粉碎も可能である。数ミリメートル ~ 数センチメートルの大きさの凝集体は、更なる加工工程において規定された凝集体の大きさに加工される。このために、例えば、振動スクリーン上に異なる網目幅及び篩分け補助を有する標準の市販のスクリーンが使用されてもよい。多工程の篩分け / 粉碎篩分けプロセスが有利であることが証明されている。

【0147】

50

それらの生成に続いて、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、更なる処理を受けてもよい。この場合、例えば、以下の可能な処理のうちの1つ以上が行われてもよい。

- 水蒸気処理
- 室温で、又は熱の影響下で、かつキャリア又は反応ガスを用いた、シラン、チタン酸塩、又はその他の有機金属化合物による表面改質。この表面改質はまた、窒化結合された鱗片状の凝集体の場合において、窒化結合相の耐加水分解性を上昇させる。
- ポリマー、例えば、ポリエチレングリコール(PEG)、ポリビニルアルコール(PVA)、ポリビニルブチラール(PVB)、ポリビニルピロイド(PVP)、コポリマー、アクリレート、オイル、又はカルボン酸による表面改質。

- ゾルゲル系、例えば、ベーマイトゾル又は SiO_2 ゾルによる溶浸、あるいは水溶性ガラス若しくはナノ粒子若しくは表面改質ナノ粒子、又はこれらの混合物による溶浸。

- 水溶性又はエタノール溶解性ポリマーによる溶浸。窒化ホウ素凝集体は、例えば、シリコーン、エポキシ、若しくはポリウレタン樹脂等の樹脂で溶浸されてもよく、その樹脂は、化合前若しくは化合中に、硬化剤で硬化されてもよいし、又は熱硬化されてもよい。

- 窒化結合された鱗片状の凝集体の場合における、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の表面酸化をもたらす酸素下での加熱処理。例えば、凝集体に、500を超える空气中での酸化によって、窒化チタン(TiN)を含有する結合相では表面 TiO_2 が生成され得、窒化ケイ素(Si_3N_4)を含有する結合相では表面 SiO_2 が生成され得、窒化アルミニウム(AlN)を含有する結合相では表面酸化アルミニウム(Al_2O_3)が生成され得る。結合相としてAlNを含有する異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体に関して、空気中の加熱処理は、好ましくは500以上の温度、より好ましくは700~1200の温度、及び特に好ましくは700~1000の温度で行うことができる。

【0148】

列挙された表面処理はまた、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体と、例えば、一次窒化ホウ素粒子等の他の窒化ホウ素充填剤との混合物に対して行われてもよい。

【0149】

前記処理のうちいくつかを任意の順序で組み合わせることも可能である。例えば、処理を流動床法で行ってもよい。

【0150】

列挙された処理を用いて、本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物におけるポリマーマトリックスと鱗片状の窒化ホウ素凝集体との改善されたカップリングを達成することが可能である。

【0151】

異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体は、優れた機械的安定性を呈する。充填、輸送、投与、化合、つまり、窒化ホウ素凝集体をポリマー/窒化ホウ素化合物にする更なる加工、及び射出成形によるその後の成型に耐えなければならないため（最小の崩壊のみで可能である場合）、窒化ホウ素凝集体の機械的安定性は重要である。窒化ホウ素凝集体が化合中に崩壊した場合は、ポリマー/窒化ホウ素化合物のレオロジー特性が悪化し、化合物から生成される構成部品、特に、射出成形された薄いプレートにおける熱伝導率が、平面貫通方向で減少するという危険性が存在する。平面貫通方向での熱伝導率が、一次窒化ホウ素粒子を使用して生成されるポリマー化合物のものに相当する水準に下がるまで低下するくらいまで、窒化ホウ素凝集体が分解される危険性が存在する。

【0152】

異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体に関して、本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物の熱伝導率は、小板形状の一次窒化ホウ素粒子を使用して生成されるポリマー/窒化ホウ素化合物において見られるほどは指向的に依存性ではない。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体を用いて生成される本発明によるポリマー/窒化ホウ素化合物の平面内熱伝導率が、同一の化学組成を有する等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体を使用して生

10

20

30

40

50

成される本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物よりも著しく高いのに対して、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体を用いて生成された本発明による窒化ホウ素ポリマー化合物の平面貫通方向熱伝導率は、ほぼ同じ水準にある。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体は、大きい数字大きいサイズのポリマー溶融を用いた化合プロセスに耐えるのに十分な強度を有する。

【0153】

驚くべきことに、異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体の平面貫通方向熱伝導率は、凝集していない小板形状の窒化ホウ素の使用時と比較して、他の点では同等の加工条件下で、ポリマー／窒化ホウ素化合物中において、30体積%の充填剤装填を用いて50%以上、及び40体積%の充填剤装填を用いて2倍を超えて上昇され得る。これらの上昇が、薄いプレートの射出成形時の二軸スクリュー押出機における粗い化合によっても達成されたことは、特に驚くべきことである。

10

【0154】

等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体、及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体は、化合及び約2mmの壁厚を有する薄いプレートの射出成形において使用するのに十分に安定している。更に高い凝集体の安定性が必要とされる薄いプレートの壁厚が更に低減される場合、いずれの場合も、等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体中の結合相の割合を増加させることによって、安定性必要要件への調整を行うことができる。

20

【0155】

等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性を調整又は上昇させることによって、研磨二次充填剤を含む混合物も利用可能であることもまた利点である。研磨二次充填剤を含む窒化ホウ素凝集体の混合物中では、慣習的な窒化ホウ素凝集体は、分解される。本発明に従って使用される窒化ホウ素凝集体では、例えば、異方性比等の有利な熱伝導率特性が維持される程度まで、分解が低減される。

20

【0156】

特に、熱可塑加工中の溶融粘度が高い高充填剤含有量の場合に、結合相の割合を増加させることによって、等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性を調整できることは、更なる利点であり、このようにして、充填剤の高い剪断が生じ、それにより、高充填剤含有量又は高含有量の充填剤混合物の加工が可能である。

30

【0157】

等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体、異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体、及び無機結合相を有する鱗片状の窒化ホウ素凝集体の安定性の調整能力のおかげで、各用途における熱伝導性充填剤の研磨性と適当な安定性との間の良好な妥協を得ることができる。

【0158】

更なる好ましい実施形態では、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、熱伝導性充填剤である窒化ホウ素凝集体に加えて、窒化ホウ素とは異なりかつ熱伝導率を上昇させる熱伝導性充填剤として少なくとも1つの充填剤を更に含有してもよい。これらの追加の充填剤は、以後、二次充填剤とも称される。

40

【0159】

そのような二次充填剤の熱伝導率は、典型的には、 $5\text{ W/m}\cdot\text{K}$ (0.05 W/cm) 以上、好ましくは $8\text{ W/m}\cdot\text{K}$ (0.08 W/cm) 以上である。

【0160】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の総割合は、いずれの場合もポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、好ましくは少なくとも20体積%、及びより好ましくは少なくとも30体積%である。好ましくは、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体及

50

び二次充填剤の総割合は、いずれの場合もポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、最大70体積%、より好ましくは最大60体積%である。特に好ましくは、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の総割合は、いずれの場合もポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、最大50体積%である。

【0161】

好ましくはアルミニウム、ケイ素、チタン、銅、鉄、及びブロンズ粉末、並びにそれらの混合物を含む群から選択される粉末金属が、二次充填剤として使用され得る。

【0162】

黒鉛、膨張黒鉛、又はカーボンブラックの形態の炭素もまた、二次充填剤として使用されてよく、膨張黒鉛が特に好ましい。

【0163】

更に、酸化物、窒化物、及び炭化物等のセラミック充填剤もまた、二次充填剤として使用されてよく、好ましくは、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、二酸化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素、及びそれらの混合物を含む群から選択され、特に好ましくは酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び／又は窒化アルミニウムである。

【0164】

鉱物充填剤もまた、二次充填剤として使用されてよく、好ましくはアルミニノケイ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム($2\text{MgO}\cdot\text{SiO}_2$)、アルミン酸マグネシウム($\text{MgO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$)、ブルーサイト(水酸化マグネシウム、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$)、石英、クリストバライト、及びそれらの混合物を含む群から選択される。カイアナイト(Al_2SiO_5)及び／又はムライト($3\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$)が、例えば、アルミニノケイ酸塩又はケイ酸アルミニウムとして使用され得る。

【0165】

二次充填剤の組み合わせも可能である。異方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体と、熱伝導性充填剤としてアルミニノケイ酸塩及び膨張黒鉛と、の組み合わせが、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物において特に有利であることが証明されている。

【0166】

二次充填剤は粒子状形態で存在することが好ましい。二次充填剤粒子の形状は、不規則な塊状、又は球状、又は小板形状であってよい。本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物中の小板形状の二次充填剤の割合は、好ましくは10体積%以下、より好ましくは5体積%以下である。

【0167】

二次充填剤は、好ましくは、 $0.5\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $1\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $2\mu\text{m}$ 以上、及び特に好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上の粒子直径又は小板直径を有する。

【0168】

二次充填剤は、粉末として、好ましくは凝集した粉末として存在する。二次充填剤の凝集は、例えば、Erichミキサー中での、ローラー締固め又は粒子成長造粒を介して行うことができる。PVA溶液が、造粒剤として使用されてもよい。化合中、二次充填剤顆粒は、好ましくは、投与前に押出機内で窒化ホウ素充填剤と混合される。二次充填剤顆粒は、二次充填剤顆粒を窒化ホウ素充填剤と混合する前に乾燥される。二次充填剤の造粒は、化合中の均一な投与を促進する。

【0169】

窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の充填剤組み合わせを使用する場合、等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体及び／又は異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、好ましくは、二次充填剤との組み合わせで使用される。異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤からなる充填剤混合物の使用が好ましい。

【0170】

10

20

30

40

50

鱗片状の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の充填剤組み合わせを用いた本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物熱伝導の率は、二次充填剤を単独で使用して生成されるポリマー化合物のものよりも高く、いずれの場合も、総体積において同じ割合の充填剤を使用する。

【0171】

驚くべきことに、窒化ホウ素凝集体、特に、好ましい異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体と二次充填剤との組み合わせは、その充填剤の組み合わせを用いて生成される本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物の達成される熱伝導率の値が、対応する割合の窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤で個々に充填されるポリマー材料の熱伝導率の値（いずれの場合も、充填されていないベースポリマーの熱伝導率を差し引く）を追加した場合に、予期された値よりも高いことを示す。これは、平面内熱伝導率及び平面貫通方向熱伝導率の両方に当てはまる。

【0172】

窒化ホウ素凝集体に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、一次窒化ホウ素粒子も含有し得る。同様に、一次窒化ホウ素粒子は、窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤の充填剤の組み合わせを使用して生成されるポリマー／窒化ホウ素化合物中で更に使用され得る。使用される一次窒化ホウ素粒子は、窒化ホウ素粉末であり得るが、例えば、化合中にほとんど又は完全に一次粒子に分解された噴霧乾燥した窒化ホウ素凝集体等のより不安定な窒化ホウ素凝集体でもあってもよい。本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物中の追加の一次窒化ホウ素粒子の割合は、好ましくは20体積%以下、特に好ましくは10体積%以下である。

【0173】

5 W / m · K (0.05 W / cm) 以上の熱伝導率を有する窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、例えば、タルク等の5 W / m · K (0.05 W / cm) 未満のより低い熱伝導率を有する窒化ホウ素とは異なる追加の充填剤を含有してもよい。

【0174】

熱伝導性充填剤に加えて、本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物はまた、例えば、機械的若しくは電気的特性又は熱膨張係数の調整等の他の機能を担う更なる添加剤及び充填剤を含有してもよい。充填剤は、例えば、塊状、球状、小板形状、線維状粒子、又は不規則な形態を有する粒子として存在し得る。

【0175】

本発明による構成部品及びポリマー／窒化ホウ素化合物の生成に関して、異なる分留の窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体又は異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の混合物もまた使用され得る。窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体及び異方性の鱗片状の窒化ホウ素凝集体の混合物も可能である。

【0176】

本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物は、一般的な配合集合体のうちのいずれかを使用して、化合によって生成することができる。これには、特に、一軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機、接線方向に若しくは緊密に噛み合う共回転又は逆回転遊星ローラー押出機、溝付きバレル押出機、ピン型押出機、カレンダリング（calendaring）、Buss共混練機、剪断ローラー押出機、並びに射出成形機及び反応器を含む。二軸スクリュー押出機での化合が、好ましい。

【0177】

化合に使用されるポリマーは、粉末形態で、又は顆粒の形態で存在していてよい。ポリマーは、混合物を配合集合体に供給する前に、窒化ホウ素凝集体又は窒化ホウ素凝集体及び更なる充填剤と乾燥形態で事前混合されてもよい。あるいは、窒化ホウ素凝集体及び任意に追加の充填剤のポリマー溶融物への添加は、充填剤をポリマーと最初に事前混合することなく、サイドフィーダを介して行われてもよい。更に、マスターbatch、つまり、最終用途におけるものよりも高い充填剤含有量のポリマー化合物は、例えば、二軸スクリュ

10

20

30

40

50

—押出機内において、まず生成され、次いで、ポリマーと均質化され得る。

【0178】

配合集合体中の均質化後、充填されたポリマー溶融物は、造粒される。ポリマー／窒化ホウ素化合物の造粒は、例えば、ストランドペレット化、水中造粒、ホットカット、又はコールドカットペレット化によって造粒することができる。化合物を加工するための方法の組み合わせも可能である。得られた造粒形態のポリマー／窒化ホウ素化合物は、例えば、構成部品を形成するための射出成形等の成形方法を介して、更に加工することもできる。

【0179】

本発明による構成部品は、ポリマー／窒化ホウ素化合物を熱可塑的に加工することによって生成される。ポリマー／窒化ホウ素化合物は、例えば、射出成形、押出、カレンダリング、又は射出圧縮成型によって、好ましくは射出成形又は押出によって、任意の所望の形状に成形することができる。射出成形による加工が特に好ましい。このために、例えば、マスター・バッチからの化合顆粒又は化合顆粒混合物は、油圧駆動又は電気機械駆動の可塑化装置中で溶融され得、必要な場合は、ノズルを離れるまで追加の充填剤又はポリマーと均質化されてもよい。その後の射出段階中、溶融物は、射出成形機の密閉鋳型に射出され得る。そのようにすることで、典型的な射出鋳型及びホットランナーシステムを有する鋳型の両方を使用することができる。空洞が完全に充填された後、保持圧力は、構成部品が完全に固化されるまで、一定に保持され得る。冷却時間の経過後、鋳型を開けて、構成部品を取り出すことができる。取り出しは、順々に、射出成形機の取り出し装置によって、又はロボットアーム等の他の除去方法で行うことができる。

10

20

30

【0180】

熱可塑加工中、つまり、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物の生成中又は本発明による構成部品の射出成形中、窒化結合された等方性の窒化ホウ素凝集体の割合は、化合中又は射出成形中の剪断により、化合物の有利な特性を喪失することなく一次粒子又は凝集体断片へ分解され得る。

【0181】

本発明による構成部品は、冷却される構成部品又はアセンブリ、好ましくは電子構成部品又はアセンブリの放熱のために使用される。

【0182】

本発明による構成部品は、冷却される構成部品又はアセンブリの熱を通して消散することができる薄壁部分を含む。構成部品の薄壁部分は、3mm以下、好ましくは2mm以下の厚みを有する。本発明による構成部品は、例えば、射出成形又は成形方法である押出によって生成され得る、例えば、3mm以下、好ましくは2mm以下の厚みを有する薄いプレートとして存在してよい。本発明による構成部品はまた、導電性であっても絶縁性であってもよい。成形工程又はその後の加工工程の間に、薄いプレートの形態の導電性及び非導電性の層からなる積層を生成することも可能であり、本発明によるポリマー／窒化ホウ素化合物を使用して、少なくとも薄いプレートの電気絶縁層が生成された。

【0183】

例えば射出成形による成形後、本発明による構成部品は、コーティングされて提供されてもよく、例えば、金属化されてもよい。導体経路を適用することも可能である。

40

【0184】

本発明による構成部品は、均一又は非均一な壁厚を有する平坦又は曲面プレートとして存在してもよい。本発明による構成部品の表面は、滑らかであっても粗くてもよい。

【0185】

本発明による構成部品は、電子構成部品のための担体プレートとして機能することができ、又は一方の構成部品から他方へ熱を移動させることができる。本発明による構成部品はまた、薄膜又は薄壁管として存在してもよい。本発明による構成部品はまた、実質的に薄壁の筐体、載置要素若しくは接続要素又は管の薄壁の主要部分として存在してもよい。本発明による構成部品は、更に、冷却要素の一部分である冷却フィン、筐体、載置要素、

50

接続要素若しくは管として存在してもよく、載置は、例えば、ランプソケットであり得る。より複雑な構成部品では、本発明による構成部品は、プレートとして、プレートの積層体の一部あってよく、プレートの積層体内のプレートは、冷却フィンとして機能し得る。

【0186】

以下の項目は、本発明及び好ましい実施形態を説明することが意図される。

1. 構成部品の少なくとも一部分上に最大3mmの壁厚を有する構成部品であって、前記構成部品が、ポリマー／窒化ホウ素化合物の熱可塑加工によって生成され、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物が、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導充填剤を含み、前記充填剤が、窒化ホウ素凝集体を含む、構成部品。

2. 前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が、少なくとも1W/m·K(0.01W/cm)、好ましくは少なくとも1.2W/m·K(0.012W/cm)、より好ましくは少なくとも1.5W/m·K(0.015W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも1.8W/m·K(0.018W/cm)であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4に従って、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、項目1に記載の構成部品。

3. 前記構成部品の平面内熱伝導率が、少なくとも1.5W/m·K(0.015W/cm)、好ましくは少なくとも1.8W/m·K(0.018W/cm)、より好ましくは少なくとも2.2W/m·K(0.022W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも2.7W/m·K(0.027W/cm)であり、前記熱伝導率が、DIN EN ISO 22007-4に従って、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、項目1又は2に記載の構成部品。

4. 前記平面貫通方向熱伝導率に対する前記平面内熱伝導率の異方性比が、少なくとも1.5～最大4、好ましくは少なくとも1.5～最大3.5、更により好ましくは少なくとも1.5～最大3.0、及び特に好ましくは少なくとも1.5～最大2.5である、項目2及び／又は3に記載の構成部品。

5. 前記構成部品の平面貫通方向熱伝導率が、熱伝導性充填剤なしの前記ポリマー材料の前記熱伝導率よりも少なくとも0.8W/m·K(0.008W/cm)、好ましくは少なくとも1W/m·K(0.01W/cm)、より好ましくは少なくとも1.3W/m·K(0.013W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも1.6W/m·K(0.016W/cm)高く、前記熱伝導率が、平面貫通方向で、DIN EN ISO 22007-4に従って、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、項目1～4のいずれか一項に記載の構成部品。

6. 前記構成部品の平面内熱伝導率が、熱伝導性充填剤なしの前記ポリマー材料の前記熱伝導率よりも少なくとも1.3W/m·K(0.013W/cm)、好ましくは少なくとも1.6W/m·K(0.016W/cm)、より好ましくは少なくとも2.0W/m·K(0.02W/cm)、及び特に好ましくは少なくとも2.5W/m·K(0.025W/cm)高く、前記熱伝導率が、平面内方向で、DIN EN ISO 22007-4に従って、2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で測定される、項目1～5のいずれかに記載の構成部品。

7. 窒化ホウ素凝集体の割合が、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも5体積%、好ましくは少なくとも10体積%、より好ましくは少なくとも20体積%、及び特に好ましくは少なくとも30体積%である、項目1～6のいずれか一項に記載の構成部品。

8. 窒化ホウ素凝集体の割合が、前記ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、最大70体積%、好ましくは最大60体積%、及び特に好ましくは最大50体積%である、項目1～7のいずれか一項に記載の構成部品。

9. 前記ポリマー材料が、熱可塑性材料である、ポリアミド(PA)、ポリフェニレンサルファイド(PPS)、ポリカーボネート(PC)、ポリプロピレン(PP)、熱可塑性エラストマー(TPE)、熱可塑性ポリウレタンエラストマー(TPU)、ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)、液晶ポリマー(LCP)、ポリオキシメチレン(POM)

10

20

30

40

50

)、及び熱可塑的に加工することができるデュロプラスチック成型材料からなる群から選択される、項目1～8のいずれか一項に記載の構成部品。

10. 前記窒化ホウ素凝集体が、少なくとも1つの窒化物及び／又はオキシ窒化物を含む無機結合相によって互いに結合している小板形状の六方晶窒化ホウ素一次粒子を含む、項目1～9のいずれか一項に記載の構成部品。

11. 前記窒化ホウ素凝集体の前記無機結合相が、窒化アルミニウム(A1N)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、又は／及び窒化ホウ素(BN)、好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び／又は窒化ケイ素、より好ましくは窒化アルミニウム、及び／又はオキシ窒化アルミニウムを含む、項目10に記載の構成部品。

12. 前記窒化ホウ素凝集体の前記無機結合相が、窒化アルミニウムを含む、項目10又は11に記載の構成部品。

13. 前記窒化ホウ素凝集体が、いずれの場合も窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、少なくとも1重量%、好ましくは少なくとも5重量%、より好ましくは少なくとも10重量%、より好ましくは少なくとも20重量%、及び特に好ましくは少なくとも30重量%の結合相割合を有する、項目10～12のいずれか一項に記載の構成部品。

14. 前記窒化ホウ素凝集体の平均凝集体直径(d₅₀)が、1000μm以下、好ましくは500μm以下、より好ましくは400μm以下、より好ましくは300μm以下、及び特に好ましくは200μm以下である、項目10～13のいずれか一項に記載の構成部品。

15. 前記窒化ホウ素凝集体のアスペクト比が、1.0～1.8、好ましくは1.0～1.5である、項目10～14のいずれか一項に記載の構成部品。

16. 前記窒化ホウ素凝集体が、互いに凝集して薄片状の窒化ホウ素凝集体を形成する小板形状の六方晶一次窒化ホウ素粒子を含む、項目1～15のいずれか一項に記載の構成部品。

17. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の組織指数が、2.0超、及び好ましくは2.5以上、又はより好ましくは3.0以上、又は特に好ましくは3.5以上である、項目16に記載の構成部品。

18. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の平均凝集体直径(d₅₀)が、1000μm以下、好ましくは500μm以下、より好ましくは400μm以下、より好ましくは300μm以下、及び特に好ましくは200μm以下である、項目16又は17のいずれかに記載の構成部品。

19. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の厚みが、500μm以下、好ましくは200μm以下、より好ましくは100μm以下、より好ましくは70μm以下、より好ましくは50μm以下、及び特に好ましくは35μm以下である、項目16～18のいずれか一項に記載の構成部品。

20. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体のアスペクト比が、1超、好ましくは2.0以上、より好ましくは3.0以上、より好ましくは5以上、及び特に好ましくは10以上である、項目16～19のいずれか一項に記載の構成部品。

21. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、無機結合相を含む、項目16～20のいずれか一項に記載の構成部品。

22. 前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体が、いずれの場合も前記鱗片状の窒化ホウ素凝集体の総量に基づいて、少なくとも1%、好ましくは少なくとも5%、より好ましくは少なくとも10%、より好ましくは少なくとも20%、及び特に好ましくは少なくとも30%の結合相の割合を有する、項目21に記載の構成部品。

23. 前記結合相が、窒化アルミニウム(A1N)、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン(TiN)、窒化ケイ素(Si₃N₄)、又は／及び窒化ホウ素(BN)、好ましくは窒化アルミニウム、オキシ窒化アルミニウム、窒化チタン、及び／又は窒化ケイ素、より好ましくは窒化アルミニウム、及び／又はオキシ窒化アルミニウムを含む、項目21又は22のいずれかに記載の構成部品。

10

20

30

40

50

24. 前記結合相が、窒化アルミニウム（AlN）を含有する、項目23に記載の構成部品。

25. 熱伝導率を上昇させる窒化ホウ素とは異なる少なくとも1つの充填剤を含む、項目1～24のいずれか一項に記載の構成部品。

26. 窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、好ましくはアルミニウム、ケイ素、チタン、銅、鉄、及びブロンズ粉末、並びにそれらの混合物からなる群から選択される金属粉末である、項目25に記載の構成部品。

27. 窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、黒鉛、膨張黒鉛、又はカーボンブラックの形態の炭素であり、膨張黒鉛が特に好ましい、項目25に記載の構成部品。

28. 窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、好ましくは酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、二酸化ケイ素、炭化ケイ素、窒化ケイ素、及びそれらの混合物を含む群から選択される酸化物、窒化物、又は炭化物であり、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、及び／又は窒化アルミニウムが特に好ましい、項目25に記載の構成部品。
10

29. 窒化ホウ素とは異なる前記充填剤が、鉱物充填剤であり、好ましくは、アルミニケイ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム（ $2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$ ）、アルミニ酸マグネシウム（ $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ ）、ブルーサイト（水酸化マグネシウム、 Mg(OH)_2 ）、石英、クリストバライト、及びそれらの混合物を含む群から選択される、項目25に記載の構成部品。

30. 窒化ホウ素凝集体と窒化ホウ素とは異なる前記熱伝導性充填剤との合計割合が、いずれの場合も前記ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、少なくとも20体積%、好ましくは少なくとも30体積%である、項目25～29のいずれか一項に記載の構成部品。
20

31. 窒化ホウ素凝集体と窒化ホウ素とは異なる前記熱伝導性充填剤との合計割合が、いずれの場合も前記ポリマー／窒化ホウ素化合物の総体積に基づいて、最大70体積%、好ましくは最大60体積%、及び特に好ましくは最大50体積%である、項目25～30のいずれか一項に記載の構成部品。

32. 前記構成部品の前記壁厚が、前記構成部品の少なくとも一部分上で最大2mmである、項目1～31のいずれか一項に記載の構成部品。

33. 項目1～32のいずれか一項に記載の構成部品を生成するためのポリマー／窒化ホウ素化合物であって、熱可塑的に加工可能なポリマー材料及び熱伝導性充填剤を含み、前記充填剤が、窒化ホウ素凝集体を含む、ポリマー／窒化ホウ素化合物。
30

34. 冷却される構成部品又はアセンブリから、好ましくは電子構成部品又はアセンブリから放熱するための、項目1～32のいずれか一項に記載の構成部品の使用。

【0187】

実施例及び参照例

窒化ホウ素凝集体又は充填剤混合物とのポリマーの化合において、ZSE 18 MA XX二軸スクリュー押出機（Leistritz, Nuremberg, Germany）を使用する。一方が、2つの混合要素及び6つの混練ブロックを有する比較的粗い「標準の」スクリュー構成（スクリュー構成1）であり、他方が、3つの混合要素を有し、混練ブロックを有さない、より優しい「穏やかな」スクリュー構成（スクリュー構成2）である、2つの異なるスクリュー構成を使用する。スクリュー速度を、300 RPM及び900 RPMに設定する。ポリアミドPA 6（Schulamid（登録商標）6 NV 12）をポリマーとして使用する。化合中、ポリマー溶融物を265まで加熱する。スループットを、全ての試験において6kg/hに設定する。メインフィーダを介してポリマーを供給する。充填剤（窒化ホウ素凝集体）又は充填剤混合物（窒化ホウ素凝集体及び二次充填剤）は、サイドフィーダを介して供給される。
40

【0188】

充填剤を含有するポリマー溶融物は、2つの3mmノズルを通して放出され、ストランドの形態で冷却され、顆粒を形成するように細断機内で加工される。射出成形によって、

10

20

30

40

50

80 × 80 mm² の基部を有する 2 mm の薄いプレートを顆粒から生成する。

【実施例】

【0189】

(実施例1)

実施例1a)：窒化ホウ素ハイブリッド薄片（異方性の鱗片状の窒化結合された窒化ホウ素凝集体）の生成

4000 g のアルミニウムペースト STAPA ALUPOR SK I-NE / 70 (Eckart, Hartenstein, Germany) 及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 BORONID (登録商標) S1-SF (ESK Ceramics GmbH & Co. KG, Germany; レーザー回折 (Mastersizer 2000, Malvern、湿式測定) によって測定される平均粒径 $d_{50} = 3 \mu\text{m}$) を、ローラー ブロック上の PE ドラム内で粉碎ボールを用いて 20 時間均質化する。粉末混合物を、8 kg/h で重量測定式投与によって、ローラーコンパクター RC 250 × 250 (Pottec, Remscheid, Germany) に投与する。それらが空で運転されるときに平滑ステンレス鋼ローラーが接触するように、ローラーコンパクターを変更する。3 kN/cm のローラー間隙長に対応する 75 kN の接触力をローラー上にもたらし、ローラー速度を 20 RPM に設定する。これは、30 μm の厚み及び最大数センチメートルの直径を有する窒化ホウ素ハイブリッド薄片をもたらす。ローラーに接着している未完成の（即ち、締め固められたが、加熱処理されていない）窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、スクリーパーを用いて除去する。締固め後、200 μm 未満の微粉を篩分けによって除去し、次の、4000 g のアルミニウムペースト及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 S1 との原材料均質化中に、PE ドラム内に供給する。このプロセスを、合計 55 kg の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が生成されるまで繰り返す。窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、300 で 80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気中の空気の排除下で結合剤から解放され、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中のアルミニウムの割合は、5 時間の保持時間中に 80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気下でほとんどの部分が 800 で AlN に転換される。その後、80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気下で、1950 で 2 時間高温焼鈍を行う。
10
20
20

【0190】

4000 g のアルミニウムペースト STAPA ALUPOR SK I-NE / 70 (Eckart, Hartenstein, Germany) 及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 BORONID (登録商標) S1-SF (ESK Ceramics GmbH & Co. KG, Germany; レーザー回折 (Mastersizer 2000, Malvern、湿式測定) によって測定される平均粒径 $d_{50} = 3 \mu\text{m}$) を、ローラー ブロック上の PE ドラム内で粉碎ボールを用いて 20 時間均質化する。粉末混合物を、8 kg/h で重量測定式投与によって、ローラーコンパクター RC 250 × 250 (Pottec, Remscheid, Germany) に投与する。それらが空で運転されるときに平滑ステンレス鋼ローラーが接触するように、ローラーコンパクターを変更する。3 kN/cm のローラー間隙長に対応する 75 kN の接触力をローラー上にもたらし、ローラー速度を 20 RPM に設定する。これは、30 μm の厚み及び最大数センチメートルの直径を有する窒化ホウ素ハイブリッド薄片をもたらす。ローラーに接着している未完成の（即ち、締め固められたが、加熱処理されていない）窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、スクリーパーを用いて除去する。締固め後、200 μm 未満の微粉を篩分けによって除去し、次の、4000 g のアルミニウムペースト及び 7000 g の窒化ホウ素粉末 S1 との原材料均質化中に、PE ドラム内に供給する。このプロセスを、合計 55 kg の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が生成されるまで繰り返す。窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、300 で 80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気中の空気の排除下で結合剤から解放され、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中のアルミニウムの割合は、5 時間の保持時間中に 80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気下でほとんどの部分が 800 で AlN に転換される。その後、80 % 窒素及び 20 % アルゴンの雰囲気下で、2050 °C で 2 時間高温焼鈍を行う。
30
40
40
50

【0191】

試料からの酸素が炭素と反応し、発生CO₂の含有量をIR分光法(TECH 600, LECO, Monchengladbach, Germany)によって決定するキャリアガス高温抽出によって、間接的に酸素含有量を決定した。酸素含有量は、0.15%である。

【0192】

X線透過試験を用いて、窒化ホウ素及び窒化アルミニウムの相のみを検出することが可能であった。

【0193】

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、ゴムボールを用いた振動スクリーン中で分割する。スクリーンは、5mm、2mm、1mm、及び500μmの順序で使用する。10

【0194】

500μm未満のスクリーン分留において得られた窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、レーザー回折(Mastersizer 2000, Malvern、湿式測定)によって測定して192μmの平均粒径(d₅₀)を有する。窒化ホウ素ハイブリッド薄片の厚みは、30μmである。厚みは、デジタル精密計器を使用して決定される。

【0195】

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の電荷上で測定される組織指数は、20.6である。

【0196】

生成される窒化ホウ素ハイブリッド薄片から200μm未満の分留物を分割し、100μm未満の微粉を篩分けによって分離する。凝集体の安定性を、このようにして超音波法を使用して得られた窒化ホウ素ハイブリッド薄片の100~200μmのスクリーン分留物上で決定する。窒化ホウ素ハイブリッド薄片上で決定される凝集体の安定性は、75%である。20

【0197】

500μm未満のスクリーン分留において生成される窒化ホウ素ハイブリッド薄片のSEM概観画像(図3a)は、凝集体の平坦な表面を明確に示す。これらの表面は、その後の粉碎によってではなく、成形法(2つの回転する逆運動ローラー間で圧迫)によって直接生成された成形表面である。図4bは、30μmの厚みを有する凝集体の破断面、その凝集体の平坦な成形表面及び追加の凝集体の平坦な成形表面を示す。30

【0198】

実施例1b) : PA 6 及び10体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

二軸スクリュー押出機(Leistritz ZSE 18 MAXX, Nuremberg, Germany)に、ポリアミドPA 6(Schulamid(登録商標)6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany)を、ポリマーとして重量測定式メインフィーダを介して添加し、実施例1a)からの窒化ホウ素ハイブリッド薄片を、重量測定式サイドフィーダを介して添加する。粗いスクリュー構成1が使用される。スクリュー速度を300RPMに設定し、6kg/hのスループットを実行し、4.8kg/hのPA 6をメイン供給に、及び500μm未満の篩分留物からの1.2kg/hの窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイド供給に投与する。得られた化合物は、2つの3mmノズルを通り、水浴中の冷却部を通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、10体積%である。40

【0199】

実施例1c) : 2mmの薄さのプレートの射出成形及び熱伝導率の測定

実施例1b)からの化合物を、射出成形機(Engel e-motion)中で80×80×2mm³の寸法の2mmの薄さのプレートに射出成形する。

【0200】

2mmの厚みを有する円盤形状の射出成形試料において熱伝導率を測定し、2mmの厚みを有する射出成形プレート(寸法2×80×80mm³)の中心から2×10×10mm50

m^3 の寸法の平面貫通方向熱伝導率を測定するための試料を調製する。熱伝導率を測定するための試料の厚みは、射出成形からのプレートの厚みと一致する。実施例 1 b) からの化合顆粒を、射出成形機 (Engel e-motion) 中で $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法の 2 mm の薄さのプレートに射出成形する。

【0201】

2 mm の厚みを有する円盤形状の射出成形試料上で熱伝導率を測定し、2 mm の厚みを有し、 $2 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形プレート（寸法 $2 \times 80 \times 80 \text{ mm}^3$ ）の中心から平面貫通方向熱伝導率を測定するための試料を調製する。平面貫通方向熱伝導率を測定するための試料の厚みは、射出成形からのプレートの厚みと一致する。平面内熱伝導率の測定に関して、射出成形された 2 mm の薄さのプレートのプレート積層体を瞬間接着剤を使用して一緒に接着させ、 $2 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の寸法を有する 2 mm の薄さのプレートを、調製されたプレート積層体から、射出成形試料の平面貫通方向に平行かつ流れ方向に垂直であるように調製する。この試料を使用して平面内熱伝導率を決定する。

10

【0202】

異方性比は、記載されるように決定される平面内熱伝導率を測定し、それを記載されるように測定される平面貫通方向熱伝導率で割ることによって計算される。

【0203】

熱伝導率の測定に関しては、レーザーフラッシュ法を使用して、DIN EN ISO 22007-4 に従い Nanoflash LFA 447 (Netzsch, Selb, Germany) で行う。測定は 22 で行う。

20

【0204】

熱伝導率 (TC) は、熱拡散率 a 、比熱容量 c_p 、及び密度 D に関する値を測定することによって求められ、これらの値から次の式によって算出される。

$$TC = a \times c_p \times D.$$

a 及び c_p は、Nanoflash LFA 447 (Netzsch, Selb, Germany) を用いて、上述のように生成された $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する試料上で測定する。密度は、正確に成形された試料を秤量し、その幾何学的寸法を求ることによって算出する。標準の Pyroceram 9606 を測定に使用する。

30

【0205】

化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0206】

充填されていないポリマー PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12) に対して、 $80 \times 80 \times 2 \text{ mm}^3$ の寸法を有する射出成形された薄いプレート上で決定される熱伝導率は、 $0.26 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ (0.0026 W/cm) である。

40

【0207】

(実施例 2)

PA 6 及び 20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を実施例 1 に従って行い、この間、10 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の代わりに、この場合は、20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、PA 6 中で化合される。

【0208】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0209】

(実施例 3)

PA 6 及び 30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合は、実施例 1 に従って行い、この間、10 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の代わりに、この場合は、30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、PA 6 中で化合される。

50

【0210】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0211】

(実施例4)

PA 6 及び 40 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例1に従って行い、この間、10 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の代わりに、この場合は、40 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、PA 6 中で化合される。

【0212】

10

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0213】

(実施例5)

PA 6 及び 50 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例1に従って行い、この間、10 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の代わりに、この場合は、50 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、PA 6 中で化合される。

【0214】

20

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0215】

(実施例6)

PA 6、10 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 10 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

6.3 μm の平均粒径 (d_{50}) を有する 5.82 kg のアルミニノケイ酸塩 Treff 1 1360-400 (Quarzwerke, Frechen, Germany) 及び実施例1からの 4.18 kg のハイブリッド薄片を、ローラーブロック上の PE ドラム内で 5 分間均質化することによって、充填剤混合物を生成する。アルミニノケイ酸塩は、3.6 g / cm^3 の密度を有し、熱伝導率は、14 W / m · K (0.14 W / cm^2) である。放射線写真によると、アルミニノケイ酸塩の主相は、カイアナイト (Al_2SiO_5) である。充填剤が充填剤混合物中で数学的に計算されるものと同じ体積割合で存在するように、充填剤混合物を調整する。

30

【0216】

二軸スクリュー押出機 (Leistritz ZSE 18 max, Nuremberg, Germany) に、PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany) を重量測定式メイン供給で添加し、窒化ホウ素ハイブリッド薄片及びアルミニノケイ酸塩の充填剤混合物を、重量測定式サイド供給を介して添加する。二軸スクリュー押出機上で 300 RPM のスクリュー速度及び 6 kg / h のスループットレートを設定し、3.6 kg / h で PA 6 をメイン供給に投与し、2.4 kg / h で充填剤混合物をサイド供給に投与する。化合物中の充填剤混合物の体積割合が 20 体積% になるように、化合を調整する。得られた化合物は、2つの 3 mm ノズルを通り、次いで、水浴中の冷却部を通過し、次に、顆粒を形成するように細断される。

40

【0217】

化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、10 体積% であり、化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合も、10 体積% である。

【0218】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

50

【0219】

(実施例7)

P A 6、10体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び20体積%のアルミニケイ酸塩からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む充填剤混合物中のアルミニケイ酸塩が、数学的に計算された場合に2倍の体積割合で存在するように、アルミニケイ酸塩及び窒化ホウ素ハイブリッド薄片の量の割合が選択されることを除いて、実施例6に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が30体積%であることを除いて、実施例6に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、10体積%であり、化合物中のアルミニケイ酸塩の割合は、20体積%である。

10

【0220】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0221】

(実施例8)

P A 6、10体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び30体積%のアルミニケイ酸塩からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む充填剤混合物中のアルミニケイ酸塩が、数学的に計算された場合に3倍の体積割合で存在するように、アルミニケイ酸塩及び窒化ホウ素ハイブリッド薄片の量の割合が選択されることを除いて、実施例6に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が40体積%であることを除いて、実施例6に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、10体積%であり、化合物中のアルミニケイ酸塩の割合は、30体積%である。

20

【0222】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0223】

(実施例9)

P A 6、10体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び40体積%のアルミニケイ酸塩からなる化合物の生成

30

窒化ホウ素ハイブリッド薄片を含む充填剤混合物中のアルミニケイ酸塩が、数学的に計算された場合に4倍の体積割合で存在するように、アルミニケイ酸塩及び窒化ホウ素ハイブリッド薄片の量の割合が選択されることを除いて、実施例6に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が50体積%であることを除いて、実施例6に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、10体積%であり、化合物中のアルミニケイ酸塩の割合は、30体積%である。

40

【0224】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0225】

(実施例10)

P A 6、20体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び10体積%のアルミニケイ酸塩からなる化合物の生成

アルミニケイ酸塩を含む充填剤混合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、数学的に計算された場合に2倍の体積割合で存在するように、アルミニケイ酸塩及び窒化ホウ素ハイブリッド薄片の量の割合が選択されることを除いて、実施例6に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が30体積%であること

50

を除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、20 体積%であり、化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合は、10 体積%である。

【0226】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0227】

(実施例 11)

PA 6、20 体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 20 体積%のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

充填剤混合物を、実施例 6 に従って生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 40 体積%であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、20 体積%であり、化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合は、20 体積%である。

【0228】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0229】

(実施例 12)

PA 6、20 体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 30 体積%のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 40 体積%で存在し、アルミニノケイ酸塩が、充填剤混合物中に 60 体積%で存在することを除いて、実施例 6 に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 50 体積%であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、20 体積%であり、化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合は、30 体積%である。

【0230】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0231】

(実施例 13)

PA 6、30 体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 10 体積%のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 75 体積%で存在し、アルミニノケイ酸塩が、充填剤混合物中に 25 体積%で存在することを除いて、実施例 6 に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 40 体積%であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、30 体積%であり、化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合は、10 体積%である。

【0232】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0233】

(実施例 14)

PA 6、30 体積%の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 20 体積%のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 60 体積%で存在し、アルミニノケイ酸塩が、充填剤混合物中に 40 体積%で存在することを除いて、実施例 6 に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混

10

20

30

40

50

合物の体積割合が 50 体積 % であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、30 体積 % であり、化合物中のアルミノケイ酸塩の割合は、20 体積 % である。

【0234】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0235】

(実施例 15)

P A 6、40 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 10 体積 % のアルミノケイ酸塩からなる化合物の生成

数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 80 体積 % で存在し、アルミノケイ酸塩が、充填剤混合物中に 20 体積 % で存在することを除いて、実施例 6 に記載されるように充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 50 体積 % であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、40 体積 % であり、化合物中のアルミノケイ酸塩の割合は、10 体積 % である。

【0236】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0237】

(実施例 16)

P A 6、20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 20 体積 % の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

この場合は、アルミノケイ酸塩の代わりに水酸化マグネシウム（ブルーサイト、A P Y M A G 40, N a b a l t e c h , S c h w a n d o r f , G e r m a n y ）が使用され、したがって、数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 50 体積 % で存在し、水酸化マグネシウムが、充填剤混合物中に 50 体積 % で存在することを除いて、実施例 6 に記載されるように充填剤混合物を生成する。水酸化マグネシウムは、 $2.4 \text{ g} / \text{cm}^3$ の密度を有する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 40 体積 % であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、40 体積 % であり、化合物中の水酸化マグネシウムの割合は、10 体積 % である。

【0238】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0239】

(実施例 17)

P A 6、30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド薄片、及び 10 体積 % の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

数学的に計算された場合に、窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、充填剤混合物中に 75 体積 % で存在し、水酸化マグネシウムが、充填剤混合物中に 25 体積 % で存在することを除いて、実施例 16 に記載されるように窒化ホウ素ハイブリッド薄片及び水酸化マグネシウムを含む充填剤混合物を生成する。化合は、化合物中の充填剤混合物の体積割合が 40 体積 % であることを除いて、実施例 6 に記載されるように実施する。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の割合は、30 体積 % であり、化合物中の水酸化マグネシウムの割合は、10 体積 % である。

【0240】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0241】

10

20

30

40

50

(実施例 18)

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体（等方性の窒化結合された窒化ホウ素凝集体）の生成並びに P A 6 及び 20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

14 kg の六方晶窒化ホウ素粉末 (B O R O N I D (登録商標) S 1 - S F 、 E S K Ceramics G m b H & C o . K G , G e r m a n y 、 レーザー回折 (M a s t e r s i z e r 2 0 0 0 , M a l v e r n 、 湿式測定) によって測定される平均粒径 (d_{50}) = 3 μm) を、アルミニウムペースト (Grade S T A P A A l u p o r S K I - N E / 7 5 , E c k a r t G m b H & C o . K G , V e l d e n , G e r m a n y) からの 8 kg のアルミニウム粉末と混合し、ローラーブロック上の P E ドラム内で粉碎ボールを用いて 20 時間均質化する。

10

【0242】

粉末混合物を、重量測定式サイド供給を介して 40 kg / h で R C 2 5 0 × 2 5 0 ローラーコンパクター (P o w t e c , R e m s c h e i d , G e r m a n y) に分配する。それらが空で運転されるときに波形のステンレス鋼ローラーが接触するようにローラーコンパクターを変更する。12.2. kN / cm のローラー間隙長に対応する 306 kN の接触力をローラー上にもたらし、ローラー速度を 25 R P M に設定する。ローラーに接着している未完成のスキャップを、スクレーパーを用いて除去する。スキャップは、0.4 ~ 1.6 mm の厚みを有する。スキャップを 1 mm の網目幅を有する統合された篩網内で圧碎する。結果として得られた顆粒を同じ加工条件下で戻し、この間、統合された篩を迂回することによって、約 3 cm² の基底面及び 0.4 ~ 1.6 mm の厚みを有するスキャップを得る。

20

【0243】

300 の窒素の雰囲気中での結合剤の除去及び 800 の窒素アルゴン混合物 (80 % 窒素、20 % アルゴン) 中での 5 時間の初期窒化の後、結合相の高温窒化及び焼鈍を流动窒素アルゴン雰囲気 (80 % 窒素、20 % アルゴン) 中で、1950 で 2 時間行う。このプロセスでは、17.5 / 分で最大 1600 まで加熱を実施し、1600 での 1 時間の保持時間後、17.5 / 分で 1950 の最終温度に達するまで更なる加熱を実施する。得られた窒化結合された窒化ホウ素スキャップを、200 μm 未満の大きさまで篩によって破壊する。結果として得られる微粉の割合が、生成物に残る。

30

【0244】

このように生成される窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の平均の凝集体の大きさ (d_{50}) は、56 μm である。

【0245】

アルミニウム含有量、アルミニウムを含まない含有量、炭素含有量、酸素含有量、及び比表面面積を、実施例 1 に記載されるように決定する。焼鈍後、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中の総アルミニウム含有量は、24.2 重量% である。これは、アルミニウムの割合から、窒化ホウ素凝集体において 36.5 重量% の窒化アルミニウムの割合をもたらす。アルミニウムを含まない含有量は 0.58 重量% であり、炭素含有量は 0.12 重量% であり、酸素含有量は 0.15 重量% である。比表面 (B E T) は、6.5 m² / g である。

40

【0246】

窒化アルミニウムは、主相である六方晶窒化ホウ素に加えて、得られた窒化ホウ素ハイブリッド凝集体中で、X 線撮影で検証することができる。決定された組織指数は、1.7 である。

【0247】

200 μm 未満の生成された窒化ホウ素ハイブリッド凝集体から、100 μm 未満の微粉の割合が、篩分けによって分離される。凝集体安定性を、超音波法を使用してこのように得られた窒化ホウ素凝集体の 100 ~ 200 μm の篩分留物上で決定する。

【0248】

ホウ素凝集体上で決定された凝集体安定性は、85 % である。

50

【0249】

二軸スクリュー押出機 (Leistritz ZSE18 max, Nuremberg, Germany) に、PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany) を、重量測定式メイン供給を介して添加し、事前に生成された窒化ホウ素ハイブリッド凝集体を、重量測定式サイド供給を介して添加する。スクリュー構成 2 を図 2 に従って使用し、スクリュー速度を 300 RPM に設定し、スループットレートを 6 kg/h で実行し、3.8 kg/h で PA 6 をメイン供給に添加し、2.2 kg/h でハイブリッド凝集体をサイド供給に添加する。得られた化合物は、2つの 3 mm ノズルを通り、次いで、水浴中の冷却部を通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の割合は、20 体積 % である。

10

【0250】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0251】

(実施例 19)

PA 6 及び 30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例 18 に従って行い、この間、20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の代わりに、この場合は、30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体が、PA 6 中で化合される。

20

【0252】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0253】

(実施例 20)

PA 6 及び 40 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例 18 に従って行い、この間、20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の代わりに、この場合は、40 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体が、PA 6 中で化合される。

30

【0254】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0255】

(実施例 21)

PA 6 及び 20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例 18 に従って行い、この間、化合は、図 2 に従ってスクリュー構成 2 を用いて 900 RPM の速度で行われる。化合物中の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の割合は、20 体積 % である。

【0256】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

40

【0257】

(実施例 22)

PA 6 及び 30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成
窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例 18 に従って行い、この間、化合は、図 2 に従ってスクリュー構成 2 を用いて 900 RPM の速度で行われ、更にこの間、20 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の代わりに、この場合は、30 体積 % の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体が、PA 6 中で化合される。

【0258】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ

50

、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0259】

(実施例23)

PA 6及び20体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例18に従って行い、この間、化合物は、スクリュー構成1を用いて行われる。

【0260】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0261】

10

(実施例24)

PA 6及び30体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例19に従って行い、この間、化合物は、スクリュー構成1を用いて行われる。

【0262】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0263】

(実施例25)

20

PA 6及び40体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例20に従って行い、この間、化合物は、スクリュー構成1を用いて行われる。

【0264】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0265】

(実施例26)

30

PA 6及び20体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例21に従って行い、この間、化合物は、スクリュー構成1を用いて行われる。

【0266】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0267】

(実施例27)

40

PA 6及び30体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例22に従って行い、この間、化合物は、スクリュー構成1を用いて行われる。

【0268】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0269】

(実施例28)

50

PA 6及び40体積%の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の生成及び化合を、実施例25に従って行い、この間、化合物は、900RPMのスクリュー速度で行われる。

【0270】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0271】

(実施例 29)

窒化ホウ素ハイブリッド薄片（等方性の鱗片状の窒化結合された窒化ホウ素凝集体）の生成並びに PA 6 及び 20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成を、実施例 1 に従って実施し、この間、5.3 kg のアルミニウムペースト STAPA ALUPOR SK I - NE / 70 (Eckart , Hartenstein , Germany) 及び 6 kg の窒化ホウ素粉末 BORON ID (登録商標) S1-SF (ESK Ceramics GmbH & Co. KG , Germany 、レーザー回折 (Mastersizer 2000 , Malvern 、湿式測定) を使用して測定される平均粒径 (d_{50}) = 3 μm) を使用する。これは、10 μm の厚み及び最大数センチメートルの直径を有する窒化ホウ素ハイブリッド薄片をもたらす。実施例 1 に記載のように実施される焼鈍後、窒化ホウ素ハイブリッド薄片中の総アルミニウムの割合は、33.3 重量% であり、アルカリ性溶融融合及び ICP-OES (Arcos , Spectro , Kleve , Germany) を使用して測定される。これは、アルミニウムの割合から、窒化ホウ素ハイブリッド薄片において 50 重量% の窒化アルミニウムの割合をもたらす。

10

【0272】

X 線透過試験を用いて、窒化ホウ素及び窒化アルミニウムの相のみを検出することが可能であった。500 μm 未満の篩分留物中の窒化ホウ素ハイブリッド薄片は、レーザー回折 (Mastersizer 2000 , Malvern 、湿式測定) によって測定して 78 μm の平均凝集体直径 (d_{50}) を有する。窒化ホウ素ハイブリッド薄片の厚みは、10 μm である。高精密デジタル計器を用いて厚みを決定する。

20

【0273】

500 μm 未満の篩分留物中の生成された窒化ホウ素ハイブリッド薄片の SEM 概観画像 (図 5) は、凝集体の平坦な表面を示す。これらの表面は、その後の圧碎の結果ではなく、成形法 (2つの逆回転ローラー間での締固め) によって直接作製された成形表面である。

20

【0274】

生成された窒化ホウ素ハイブリッド薄片から、200 μm 未満の分留物を破断し、100 μm 未満の微粉を篩分けによって分離する。このようにして超音波法を使用して得られた窒化ホウ素ハイブリッド薄片の 100 ~ 200 μm の篩分留物上で凝集体安定性を決定する。ハイブリッド薄片上で決定された凝集体安定性は、80 % である。

30

【0275】

化合を、スクリュー構成 1 を用いて実施例 1 に従って実施し、この間、10 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片の代わりに、この場合は、20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片が、PA 6 中で化合される。スクリュー速度を 300 RPM に設定し、6 kg/h のスループット率を実行し、3.8 kg/h で PA 6 をメイン供給に添加し、500 μm 未満の篩分留物から、2.2 kg/h で窒化ホウ素ハイブリッド薄片をサイド供給に添加する。

【0276】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

40

【0277】

(実施例 30)

PA 6 及び 30 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例 29 に従って行い、この間、20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の代わりに、この場合は、30 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体が、PA 6 中で化合される。

【0278】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

50

【0279】

(実施例31)

P A 6 及び 40 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例29に従って行い、この間、20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体の代わりに、この場合は、40 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド凝集体が、P A 6 中で化合される。

【0280】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0281】

10

(実施例32)

P A 6 及び 20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例29に従って行い、この間、化合中のスクリュー速度を、300 R P M の代わりに 900 R P M に設定する。

【0282】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0283】

(実施例33)

20

P A 6 及び 30 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例30に従って行い、この間、化合中のスクリュー速度を、300 R P M の代わりに 900 R P M に設定する。

【0284】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0285】

(実施例34)

30

P A 6 及び 20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例29に従って行い、この間、化合は、スクリュー構成2を用いて行われる。

【0286】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0287】

(実施例35)

P A 6 及び 30 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例30に従って行い、この間、化合は、スクリュー構成2を用いて行われる。

【0288】

40

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0289】

(実施例36)

P A 6 及び 20 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成
 窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例32に従って行い、この間、化合は、スクリュー構成2を用いて行われる。

【0290】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表1に記載する。

【0291】

50

(実施例 37)

P A 6 及び 30 体積% の窒化ホウ素ハイブリッド薄片からなる化合物の生成

窒化ホウ素ハイブリッド薄片の生成及び化合を、実施例 33 に従って行い、この間、化合は、スクリュー構成 2 を用いて行われる。

【0292】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 1 に記載する。

【0293】

参照例 1 :

P A 6 及び 30 体積% の T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 からなる化合物の生成

10

二軸スクリュー押出機 (Leistritz ZSE 18 max, Nuremberg, Germany) に、ポリアミド PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany) を重量測定式メイン供給でポリマーとして添加し、窒化ホウ素凝集体 T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 (ESK Ceramics, Kempten, Germany) を、重量測定式サイド供給により添加する。粗いスクリュー構成である構成 1 を使用する。スクリュー速度を 900 RPM に設定し、6 kg/h のスループットレートを実行し、3.3 kg/h で PA 6 をメイン供給に添加し、15 μm の一次窒化ホウ素粒径を有する窒化ホウ素粉末 T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 を 2.7 kg/h でサイド供給に添加する。得られた化合物は、2 つの 3 mm ノズルを通り、次いで、水浴中の冷却部を通過し、次に、顆粒を形成するように細断される。化合物中の窒化ホウ素の割合は、30 体積% である。

20

【0294】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 2 に記載する。

【0295】

窒化ホウ素凝集体は、射出成形プレート中に一次粒子として分散し、それは、射出成形プレートの横断部及び破断表面の SEM 画像において検証することができる。

【0296】

参照例 2 :

P A 6 及び 40 体積% の T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 からなる化合物の生成

30

参照例 1 に従って化合を実施するが、30 体積% の T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 の代わりに、この場合は、40 体積% の窒化ホウ素凝集体 T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 が、PA 6 中で化合される。

【0297】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 2 に記載する。

【0298】

窒化ホウ素凝集体は、射出成形プレート中に一次粒子として分散し、それは、射出成形プレートの横断部及び破断表面の SEM 画像において検証することができる。

【0299】

参照例 3 :

P A 6 及び 50 体積% の T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 からなる化合物の生成

40

参照例 1 に従って化合を実施するが、30 体積% の T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 の代わりに、この場合は、50 体積% の窒化ホウ素凝集体 T C P 0 1 5 ~ 1 0 0 が、PA 6 中で化合される。

【0300】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例 1 に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表 2 に記載する。

【0301】

窒化ホウ素凝集体は、射出成形プレート中に一次粒子として分散し、それは、射出成形

50

プレートの横断部及び破断表面のSEM画像において検証することができる。

【0302】

参照例4：

PA 6 及び 10 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

二軸スクリュー押出機 (Leistritz ZSE18 max, Nuremberg, Germany) に、ポリアミド PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany) を、重量測定式メインフィーダを介してポリマーとして添加し、 $6.3 \mu\text{m}$ の平均粒径 (d_{50}) を有するアルミニノケイ酸塩 Treffil 1360-400 (Quarzwerke, Frechen, Germany) を、重量測定式サイドフィーダを介して添加する。粗いスクリュー構成である構成1を使用する。スクリュー速度を 300 RPM に設定し、 6 kg/h のスループットを実行し、 4.4 kg/h で PA 6 をメイン供給の間に添加し、 1.6 kg/h でアルミニノケイ酸塩をサイド供給の間に添加する。得られた化合物は、2つの 3 mm ノズルを通り、次いで、水浴中の冷却ラインを通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中のアルミニノケイ酸塩の割合は、10 体積% である。10

【0303】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0304】

参照例5：

PA 6 及び 20 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

参照例4に従って化合を実施するが、10 体積% のアルミニノケイ酸塩の代わりに、この場合は、20 体積% のアルミニノケイ酸塩が、PA 6 中で化合される。20

【0305】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0306】

参照例6：

PA 6 及び 30 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

参照例4に従って化合を実施するが、10 体積% のアルミニノケイ酸塩の代わりに、この場合は、30 体積% のアルミニノケイ酸塩が、PA 6 中で化合される。30

【0307】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0308】

参照例7：

PA 6 及び 40 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

参照例4に従って化合を実施するが、10 体積% のアルミニノケイ酸塩の代わりに、この場合は、40 体積% のアルミニノケイ酸塩が、PA 6 中で化合される。

【0309】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。40

【0310】

参照例8：

PA 6 及び 50 体積% のアルミニノケイ酸塩からなる化合物の生成

参照例4に従って化合を実施するが、10 体積% のアルミニノケイ酸塩の代わりに、この場合は、50 体積% のアルミニノケイ酸塩が、PA 6 中で化合される。

【0311】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。50

【0312】

参照例9：

PA 6 及び10体積%の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

二軸スクリュー押出機 (Leistritz ZSE18 max, Nuremberg, Germany) に、ポリアミド PA 6 (Schulamid (登録商標) 6 NV 12, A. Schulman, Kerpen, Germany) を、重量測定式メインフィーダを介してポリマーとして添加し、5 μm の平均粒径 (d_{50}) を有する水酸化マグネシウム (APY MAG 40, Nabaltech, Schwandorf, Germany) を、重量測定式サイドフィーダを介して添加する。粗いスクリュー構成である構成1を使用する。スクリュー速度を300 RPMに、及びスループットレートを6 kg/hに設定し、4.9 kg/hでPA 6をメイン供給の間に添加し、1.1 kg/hで水酸化マグネシウムをサイド供給の間に添加する。得られた化合物は、2つの3mmノズルを通り、次いで、水浴中の冷却部を通過し、顆粒を形成するように細断される。化合物中の水酸化マグネシウムの割合は、10体積%である。

10

【0313】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0314】

参照例10：

PA 6 及び20体積%の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

20

参照例9に従って化合を実施するが、10体積%の水酸化マグネシウムの代わりに、この場合は、20体積%の水酸化マグネシウムが、PA 6 中で化合される。

【0315】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0316】

参照例11：

PA 6 及び30体積%の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

30

参照例9に従って化合を実施するが、10体積%の水酸化マグネシウムの代わりに、この場合は、30体積%の水酸化マグネシウムが、PA 6 中で化合される。

【0317】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

【0318】

参照例12：

PA 6 及び40体積%の水酸化マグネシウムからなる化合物の生成

参照例9に従って化合を実施するが、10体積%の水酸化マグネシウムの代わりに、この場合は、40体積%の水酸化マグネシウムが、PA 6 中で化合される。

【0319】

射出成形及び熱伝導率測定を、実施例1に記載されるように実施する。化合パラメータ、熱伝導率測定の結果、及び異方性比を、表2に記載する。

40

【0320】

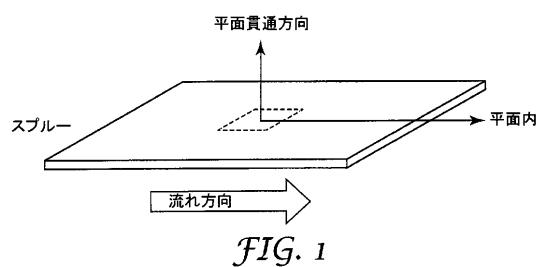
【表1】

実施例番号	塗化ホウ素塩類体 [体積%]	二次充填剤 [体積%]	[W/m·K] (W/cm ²)	[W/m·K] (W/cm ²)	平面熱伝導率 [W/m ² K] [W/m ² °C]	異方性比	スクリュ一構成	スクリュー速度 [RPM]
1	10	0	0. 89(0. 0089)	0. 48(0. 0048)	1. 8	1	1	300
2	20	0	1. 86(0. 0186)	0. 75(0. 0075)	2. 5	1	1	300
3	30	0	2. 90(0. 029)	1. 22(0. 0122)	2. 4	1	1	300
4	40	0	4. 55(0. 0455)	1. 90(0. 019)	2. 4	1	1	300
5	50	0	6. 01(0. 0601)	2. 60(0. 026)	2. 3	1	1	300
6	10	10	1. 25(0. 0125)	0. 65(0. 0065)	1. 9	1	1	300
7	10	20	1. 39(0. 0139)	0. 84(0. 0084)	1. 7	1	1	300
8	10	30	1. 83(0. 0183)	1. 26(0. 0126)	1. 5	1	1	300
9	10	40	3. 19(0. 0319)	1. 51(0. 0151)	2. 1	1	1	300
10	20	10	2. 41(0. 0241)	1. 10(0. 0111)	2. 2	1	1	300
11	20	20	3. 24(0. 0324)	1. 53(0. 0153)	2. 1	1	1	300
12	20	30	3. 61(0. 0361)	1. 97(0. 0197)	1. 8	1	1	300
13	30	10	3. 78(0. 0378)	1. 76(0. 0176)	2. 1	1	1	300
14	30	20	4. 83(0. 0483)	2. 23(0. 0223)	2. 2	1	1	300
15	40	10	5. 77(0. 0577)	2. 52(0. 0252)	2. 3	1	1	300
16	20	20	2. 56(0. 0256)	1. 17(0. 0117)	2. 2	1	1	300
17	30	10	3. 45(0. 0345)	1. 44(0. 0144)	2. 4	1	1	300
18	20	0	1. 18(0. 0118)	0. 75(0. 0075)	1. 6	2	1	300
19	30	0	2. 22(0. 0222)	1. 36(0. 0136)	1. 6	2	1	300
20	40	0	3. 52(0. 0352)	1. 70(0. 017)	2. 1	2	1	300
21	20	0	1. 15(0. 0115)	0. 66(0. 0066)	1. 7	2	1	900
22	30	0	2. 18(0. 0218)	1. 21(0. 0121)	1. 8	2	1	900
23	20	0	1. 26(0. 0126)	0. 82(0. 0082)	1. 5	1	1	300
24	30	0	2. 30(0. 023)	1. 38(0. 0138)	1. 7	1	1	300
25	40	0	3. 43(0. 0343)	1. 83(0. 0183)	1. 9	1	1	300
26	20	0	1. 35(0. 0135)	0. 80(0. 008)	1. 7	1	1	900
27	30	0	2. 10(0. 021)	1. 22(0. 0122)	1. 7	1	1	900
28	40	0	3. 66(0. 0366)	1. 72(0. 0172)	2. 1	1	1	900
29	20	0	1. 52(0. 0152)	1. 00(0. 01)	1. 5	1	1	300
30	30	0	2. 87(0. 0287)	1. 65(0. 0165)	1. 7	1	1	300
31	40	0	4. 07(0. 0407)	2. 04(0. 0204)	2. 0	1	1	300
32	20	0	1. 39(0. 0139)	0. 90(0. 009)	1. 6	1	1	900
33	30	0	2. 47(0. 0247)	1. 47(0. 0147)	1. 7	1	1	900
34	20	0	1. 42(0. 0142)	0. 90(0. 009)	1. 6	2	1	300
35	30	0	2. 57(0. 0257)	1. 61(0. 0161)	1. 6	2	1	300
36	20	0	1. 61(0. 0161)	0. 95(0. 0095)	1. 7	2	1	900
37	30	0	2. 45(0. 0245)	1. 45(0. 0145)	1. 7	2	1	900

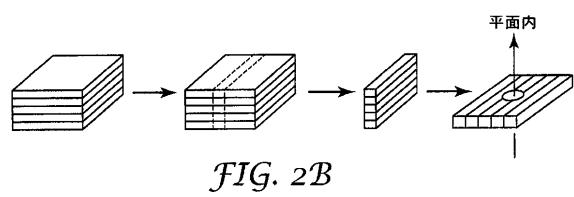
【表2】

参照例番号	一次塗化ホウ素粒子 [体積%]	二次充填剤 [体積%]	平面内熱伝導率 [W/m·K] (W/cm°C)	平面貫通方向熱伝導率 [W/m·K] (W/cm°C)	異方性比	スクリューコンポジット [RPM]
1	3.0	0	3. 98 (0. 0398)	0. 82 (0. 0082)	4. 9	1
2	4.0	0	6. 72 (0. 0672)	0. 95 (0. 0095)	7. 1	1
3	5.0	0	9. 5 (0. 095)	1. 01 (0. 0101)	9. 4	1
4	0	1.0	0. 46 (0. 0046)	0. 38 (0. 0038)	1. 2	1
5	0	2.0	0. 74 (0. 0074)	0. 56 (0. 0056)	1. 3	1
6	0	3.0	1. 01 (0. 0101)	0. 77 (0. 0077)	1. 3	1
7	0	4.0	1. 43 (0. 0143)	1. 05 (0. 0105)	1. 4	1
8	0	5.0	1. 93 (0. 0193)	1. 54 (0. 0154)	1. 3	1
9	0	1.0	0. 43 (0. 0043)	0. 38 (0. 0038)	1. 1	1
10	0	2.0	0. 70 (0. 007)	0. 52 (0. 0052)	1. 3	1
11	0	3.0	0. 94 (0. 0094)	0. 68 (0. 0068)	1. 4	1
12	0	4.0	1. 38 (0. 0138)	0. 89 (0. 0089)	1. 5	1

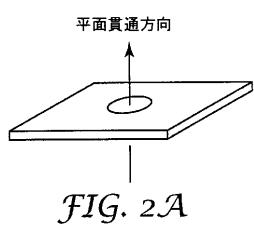
【図 1】



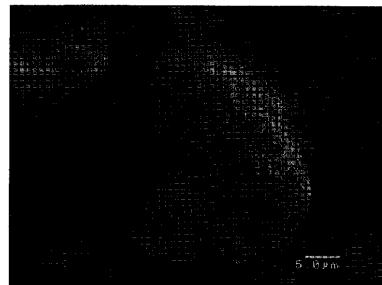
【図 2 b】



【図 2 a】



【図 3 A】



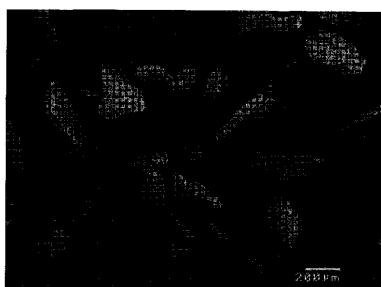
【図 3 B】



【図 4 B】



【図 4 A】



【図 5】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/EP2014/062800															
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. C08K9/02 ADD.																	
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC																	
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K																	
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched																	
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, PAJ, WPI Data																	
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category*</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">DE 10 2010 050900 A1 (ESK CERAMICS GMBH & CO KG [DE]) 10 May 2012 (2012-05-10) the whole document</td> <td style="padding: 2px;">1-5</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">-----</td> <td style="padding: 2px;">6</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">US 2006/127422 A1 (LODYGA DAVID [US] ET AL) 15 June 2006 (2006-06-15) claims 7,9; example 6</td> <td style="padding: 2px;">1-5</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">-----</td> <td style="padding: 2px;">6</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	DE 10 2010 050900 A1 (ESK CERAMICS GMBH & CO KG [DE]) 10 May 2012 (2012-05-10) the whole document	1-5	A	-----	6	X	US 2006/127422 A1 (LODYGA DAVID [US] ET AL) 15 June 2006 (2006-06-15) claims 7,9; example 6	1-5	A	-----	6
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.															
X	DE 10 2010 050900 A1 (ESK CERAMICS GMBH & CO KG [DE]) 10 May 2012 (2012-05-10) the whole document	1-5															
A	-----	6															
X	US 2006/127422 A1 (LODYGA DAVID [US] ET AL) 15 June 2006 (2006-06-15) claims 7,9; example 6	1-5															
A	-----	6															
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		<input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.															
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed																	
Date of the actual completion of the international search 25 August 2014		Date of mailing of the international search report 03/12/2014															
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.O. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Devriese, Karel															

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2014/062800

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of Item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of Item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see additional sheet

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-13(completely); 14-19(partially)

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

International Application No. PCT/ EP2014/ 062800

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-13(completely); 14-19(partially)

subject-matter with the feature: "by means of an inorganic binder phase comprising at least one nitride and/or oxynitride"

2. claims: 14-19(partially)

subject-matter with the feature: "at least one filler different from boron nitride that increases thermal conductivity"

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2014/062800

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
DE 102010050900 A1	10-05-2012	CN	103249695 A	14-08-2013
		DE	102010050900 A1	10-05-2012
		EP	2637985 A1	18-09-2013
		JP	2013543834 A	09-12-2013
		KR	20130105682 A	25-09-2013
		US	2012114905 A1	10-05-2012
		WO	2012062627 A1	18-05-2012
<hr/>				
US 2006127422 A1	15-06-2006	US	2006127422 A1	15-06-2006
		US	2012058342 A1	08-03-2012

フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I テーマコード(参考)
C 01B 21/064 (2006.01) C 01B 21/064 Z

(81) 指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,R,S,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,H,R,HU,ID,IL,IN,IR,IS,JP,KE,KG,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US

(74) 代理人 100128495

弁理士 出野 知

(72) 発明者 クリシュナ ウィベル

ドイツ連邦共和国, 87437 パルテンホーフェン, ツエットラーシュトラーセ 11

(72) 発明者 アルミニン カイザー

ドイツ連邦共和国, 87474 ブーヘンベルク, ルートビヒ - ガイガー - シュトラーセ 1

(72) 発明者 ヨハンナ ツィマーマン

ドイツ連邦共和国, 23552 リューベック, バーケニッツマウアー 90

F ターム(参考) 4J002 AA001 CL011 DA028 DA078 DA088 DA098 DA118 DC008 DE078 DE148

DF017 DF018 DJ007 DJ008 DJ018 DK006 FA016 FA017 FD016 FD017

FD018 GQ00